

Titre: Développement d'une méthode de calcul de la performance des
procédés de désinfection des installations de traitement d'eau
potable
Title:

Auteur: Valentin Pfeiffer
Author:

Date: 2013

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Pfeiffer, V. (2013). Développement d'une méthode de calcul de la performance
des procédés de désinfection des installations de traitement d'eau potable
Citation: [Master's thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.
<https://publications.polymtl.ca/1074/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie:
PolyPublie URL: <https://publications.polymtl.ca/1074/>

**Directeurs de
recherche:** Benoit Barbeau
Advisors:

Programme: Génie civil
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉVELOPPEMENT D'UNE MÉTHODE DE CALCUL DE LA
PERFORMANCE DES PROCÉDÉS DE DÉSINFECTION DES
INSTALLATIONS DE TRAITEMENT D'EAU POTABLE

VALENTIN PFEIFFER

DÉPARTEMENT DES GÉNIES CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE CIVIL)

MARS 2013

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

DÉVELOPPEMENT D'UNE MÉTHODE DE CALCUL DE LA
PERFORMANCE DES PROCÉDÉS DE DÉSINFECTION DES
INSTALLATIONS DE TRAITEMENT D'EAU POTABLE

Présenté par : PFEIFFER Valentin

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. COMEAU Yves, Ph.D., président

M. BARBEAU Benoit, Ph.D., membre et directeur de recherche

Mme DORNER Sarah, Ph.D., membre

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier Benoit Barbeau, mon directeur de recherche, qui m'a suivi tout au long de ma maîtrise, m'a conseillé et a toujours fait preuve d'un dynamisme et d'un enthousiasme débordant. Je le remercie également de m'avoir transmis sa passion pour le traitement de l'eau potable au-travers de ses cours et de nos échanges. Je tiens d'ailleurs à souligner ses talents d'enseignant, de pédagogue et de Jedi.

Je souhaite ensuite exprimer toute ma gratitude à Mélanie Rivard, qui malgré son programme plus que chargé, a su me trouver une place dans son emploi du temps pour me permettre de réaliser mes essais. En réalisant la croissance et les mesures d'*Escherichia coli*, elle m'a permis d'obtenir des résultats concluants et m'a fait sauver un temps immense. Pour cela, elle mérite toute ma reconnaissance.

Je remercie tout particulièrement Érika Déziel, ma chérie, qui en plus de son soutien invétéré tout au long de ma maîtrise, m'a aidé aux moments où j'en avais le plus besoin. Sans elle, les essais pilotes et en cuvée n'auraient pu être réalisés faute de temps et de bras.

Je remercie également Mireille Blais et Yves Fontaine, qui m'ont considérablement aidé pour la réalisation du contacteur en PVC et l'assemblage du pilote. Qui plus est, ils ont toujours fait preuve d'une gentillesse et d'une sympathie à toutes épreuves qui étaient fortement appréciées.

Je tiens aussi à exprimer toute ma reconnaissance à Julie Philibert et Evelyne Doré, qui m'ont donné un bon coup de main pour faire en sorte que le plancher du laboratoire du CREDEAU ne finisse pas rose.

Je remercie également Antoine Laporte et Roger Valiquette de la ville de Repentigny, avec qui j'ai eu l'occasion de collaborer sur certaines phases de mon projet.

Je tiens également à remercier toutes les personnes de la Chaire qui par leurs conseils ont permis à mon projet d'avancer et surtout, tous les étudiants passés par le B-616 qui ont rendu ce bureau plus agréable.

Enfin, je souhaite remercier la Chaire industrielle CRSNG en eau potable et tous ses partenaires pour m'avoir permis de réaliser ce projet, qui je l'espère, permettra d'améliorer le calcul des performances des procédés de désinfection.

RÉSUMÉ

L'objectif principal des installations de traitement d'eau potable est de réduire le risque microbiologique relié à l'ingestion de l'eau sous un seuil acceptable. Pour cela, l'ajout de désinfectant est généralement utilisé afin d'inactiver un pourcentage défini des microorganismes pathogènes présents dans l'eau. Ce pourcentage est fixé en fonction de la qualité de l'eau brute prélevée et définit les objectifs de traitement de l'usine. Le calcul des performances des procédés de désinfection permet donc de s'assurer du respect de ces objectifs. Les installations de potabilisation ont également des normes à respecter sur les contaminants chimiques présents dans l'eau. Les procédés de désinfection peuvent également servir à l'enlèvement de ces contaminants et il est donc intéressant d'estimer leurs performances à ce niveau. Pour pouvoir être utilisée à large échelle, la méthode de calcul des performances doit être à la fois simple et fiable.

Le calcul des performances des procédés de désinfection dépend de trois principaux facteurs : les cinétiques de réaction (avec les contaminants microbiologiques ou chimiques), les cinétiques de décroissance du désinfectant dans l'eau et les phénomènes hydrauliques agissant au sein du réacteur. Pour décrire chaque aspect, il existe différents modèles dont les niveaux de complexité et d'efficacité varient. Les performances d'inactivation ou d'enlèvement prédites par les méthodes finales dépendent entièrement des modèles utilisés et des hypothèses posées.

Différentes méthodes de calcul des performances existent à l'heure actuelle. La méthode réglementaire la plus connue et la plus appliquée, la méthode du T10, ne prend que partiellement en compte les phénomènes hydrauliques et la décroissance du désinfectant, et a été critiquée à plusieurs reprises. La méthode *Extended* T10, proposée par l'US EPA, se base sur les mêmes hypothèses hydrauliques contestées. Les méthodes CSTR (pour « Continuous Stirred Tank Reactor ») et *Extended* CSTR, suggérées par l'EPA, sont jugées trop conservatrices et leur hypothèse concernant l'hydraulique a été remise en question par des résultats expérimentaux. Enfin, les méthodes IDDF (« Integrated Disinfection Design Framework ») et ADR (« Axial Dispersion Reactor ») ainsi que la mécanique des fluides numérique (CFD) apparaissent trop compliquées et lourdes pour être largement utilisées, en plus de présenter des résultats assez peu convaincants. Du fait des limites identifiées dans les modèles existants, un ancien modèle, le modèle Partiellement ségrégué, a été modifié et amélioré pour répondre aux exigences de fiabilité et de simplicité.

Les différents modèles de calcul des performances ont été mis en place dans des tableurs et comparés pour différentes conditions afin de vérifier leur comportement. Ils ont également été confrontés à des résultats expérimentaux d'inactivation d'*Escherichia coli* avec du chlore dans un contacteur pilote.

Les résultats expérimentaux ont confirmé les résultats des simulations, à savoir que les méthodes T10, *Extended* T10 et IDDF ont mené à des surestimations importantes de l'inactivation réellement obtenue. Les modèles *Extended* CSTR et Partiellement ségrégué ont quant à eux donné des résultats réalistes.

Une nouvelle méthode basée sur le modèle Partiellement ségrégué a été proposée. Celle-ci repose sur la réalisation d'essais de traçage pour évaluer les performances hydrauliques et l'utilisation de serpentins en parallèle pour déterminer la décroissance du désinfectant. Sa fiabilité a été démontrée par les résultats des simulations et des expériences pilotes. Sa simplicité a été mise en évidence par un exemple d'installation.

Des recommandations générales ont finalement été émises. L'abandon des méthodes basées sur le concept du T10 a été suggéré du fait des surestimations engendrées. En conséquence, la mise à jour des méthodes de calcul réglementaires a été conseillée. Enfin, l'obligation de réaliser des essais de traçage pour mesurer les performances hydrauliques a été proposée.

ABSTRACT

The main goal of drinking water facilities is reducing the microbiological risk related to water ingestion under an acceptable threshold. To achieve that, disinfectants are usually added in water in order to inactivate a given percentage of pathogenic microorganisms. The Water Treatment Plants' (WTP) goals are represented by this percentage, which is defined based on the raw water quality. The calculation of disinfection performance for each process is used to ensure compliance with these goals. WTPs also have to respect standards on chemical contaminants present in water. Disinfection processes are useful for removing these contaminants and their performance should be assessed. The performance calculation has to be both simple and reliable for widespread application.

The calculation of disinfection processes performance depends on three main factors: the reaction kinetics (with microbiological or chemical contaminants), the disinfectant decay kinetics and the hydraulic phenomena acting inside the reactor. Each aspect is described by several possible models which are identifiable by their degrees of complexity and effectiveness. The calculated performance is fully influenced by the models employed and the assumptions made.

Several different methods for calculating performance have been suggested. The most famous and used one is the T10 method. It has often been criticized as it does not fully account for the hydraulic phenomena and the disinfectant decay. The Extended T10 method, recently put forward by U.S. EPA, is based on the same hydraulic assumptions. The CSTR (Continuous Stirred Tank Reactor) and Extended CSTR methods, also suggested by the EPA, are considered as too conservative and their hydraulic assumptions have been questioned by experimental results. Finally, the IDDF (Integrated Disinfection Design Framework), ADR (Axial Dispersion Reactor) and CFD (Computational Fluid Dynamics) approaches seem too complicated and computationally-intensive for widespread application. Moreover, the results obtained are not fully convincing. Due to all these limitations in existing methods, a former model called the Partially segregated model has been modified and improved to meet the reliability and simplicity requirements.

In order to check their behaviour, these predictive models were encoded into spreadsheets and their results compared for different conditions. They were also confronted with experimental data obtained in a pilot-scale chlorine contactor used for *Escherichia coli* inactivation.

The experimental results agreed with the simulated ones as the T10, Extended T10 and IDDF methods led to significant overestimation of measured inactivation. The Extended CSTR and Partially segregated models gave realistic results.

A new method based on the Partially segregated model was suggested. This method requires tracer tests results to evaluate the hydraulic performance and a side-stream system to find disinfectant decay parameters. Its reliability has been demonstrated through simulations and experimental results. Its simplicity has been proved using a setting up example.

General recommendations were put forward. The withdrawal of T10 based methods was suggested due to overestimation risk. Consequently, the update of regulatory calculation methods was advised. Finally, the measurement of hydraulic performance was suggested to be required using tracer assays.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	III
RÉSUMÉ.....	IV
ABSTRACT	VI
TABLE DES MATIÈRES	VIII
LISTE DES TABLEAUX.....	XV
LISTE DES FIGURES.....	XVI
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XVIII
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE	3
1.1 Fondements du calcul de l'inactivation.....	3
1.1.1 Cinétiques d'inactivation.....	3
1.1.1.1 Modèle de Chick-Watson.....	3
1.1.1.2 Modèle de Hom.....	4
1.1.1.3 Modèle Rationnel (« Rational Model »)	5
1.1.2 Décroissance du désinfectant	5
1.1.2.1 Décroissance du 1 ^{er} ordre avec demande immédiate	5
1.1.2.2 Décroissance du 1 ^{er} ordre précédée d'une décroissance de 2 ^e ordre	6
1.1.3 Phénomènes hydrauliques	7
1.1.3.1 Mélange à l'échelle macroscopique	7
1.1.3.1.1 Description.....	7
1.1.3.1.2 Mesure expérimentale.....	8
1.1.3.1.3 Modèles	8
1.1.3.1.3.1 Modèle N-CSTR.....	9

1.1.3.1.3.2	Modèle PFD.....	10
1.1.3.1.3.3	Modèle N-CSTR compartimenté.....	10
1.1.3.2	Mélange à l'échelle microscopique.....	12
1.1.3.2.1	Description.....	12
1.1.3.2.2	Mesure	12
1.1.3.2.3	Modèles	13
1.1.3.2.3.1	Segregated Flow Analysis (SFA)	13
1.1.3.2.3.2	Micro-Mixed Analysis (MMA).....	14
1.1.3.3	Résumé	15
1.2	Méthodes de calcul existantes	16
1.2.1	Méthodes réglementaires.....	16
1.2.1.1	Méthode du T10	17
1.2.1.2	Méthode <i>Extended</i> T10	18
1.2.1.3	Méthode CSTR.....	18
1.2.1.4	Méthode <i>Extended</i> CSTR.....	19
1.2.2	Méthodes alternatives.....	20
1.2.2.1	Méthode IDDF	20
1.2.2.2	Modèle ADR	21
1.2.2.3	CFD	21
1.3	Enlèvement des contaminants	22
1.3.1	Cinétique de 2 ^e ordre.....	22
1.3.2	Cinétiques de l'ozone	23
1.4	Objectifs et hypothèses de recherche	25
1.4.1	Objectifs	25

1.4.2	Hypothèses de recherche	26
CHAPITRE 2 DÉMARCHE DU TRAVAIL DE RECHERCHE		27
2.1	Étude des modèles et analyse de l'influence des paramètres de calcul	27
2.1.1	Modèles décrivant le niveau de mélange macroscopique	27
2.1.2	Modèles définissant le niveau de mélange microscopique	27
2.1.3	Amélioration d'un ancien modèle	28
2.2	Validation des modèles avec des résultats expérimentaux	28
2.2.1	Réalisation des essais	28
2.2.2	Validation des modèles	28
2.3	Développement d'une nouvelle méthode de calcul des performances	29
2.3.1	Élaboration de la méthode	29
2.3.2	Exemple de mise en place en usine	29
2.3.3	Élaboration de stratégies de traitement	29
CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE		30
3.1	Essais de traçage réalisés en usine	30
3.1.1	Essais de traçage réalisés à Chomedey et Des Bailleurs	30
3.1.2	Essais de traçage réalisés à Repentigny	31
3.2	Simulations	31
3.2.1	Matériel	31
3.2.2	Méthodes	31
3.2.2.1	Ajustement des modèles PFD et N-CSTR aux essais de traçage	31
3.2.2.2	Détermination des paramètres de calcul nécessaires pour l'utilisation du modèle SFA	32
3.2.2.2.1	Pas de temps nécessaire	32
3.2.2.2.2	Période d'intégration nécessaire	32

3.2.2.2.3	Méthode optimale d'intégration numérique	33
3.2.2.3	Simulation et comparaison des prédictions des différents modèles	33
3.3	Essais d'inactivation en pilote	33
3.3.1	Réalisation des essais	33
3.3.1.1	Matériel	33
3.3.1.1.1	Équipements	33
3.3.1.1.2	Produits chimiques	34
3.3.1.2	Méthodes	34
3.3.1.2.1	Méthode d'analyse du chlore résiduel	34
3.3.1.2.2	Méthode de production de la solution d'E. coli	34
3.3.1.2.3	Méthode d'analyse des échantillons d'E. coli	34
3.3.1.2.4	Production de tampon borate à pH 9	35
3.3.2	Analyse des résultats	35
3.3.2.1	Matériel	35
3.3.2.2	Méthodes	35
3.3.2.2.1	Détermination des paramètres cinétiques	35
3.3.2.2.2	Production de 200 valeurs aléatoires pour chaque paramètre cinétique (« bootstrap »)	36
CHAPITRE 4	ARTICLE 1 : DEVELOPMENT AND COMPARISON OF A SIMPLE AND RELIABLE METHOD TO CALCULATE DISINFECTION PERFORMANCE	37
	Abstract	37
	Keywords	37
4.1	Introduction	38
4.2	Material and Methods	41
4.2.1	Description of Disinfection Models	41

4.2.1.1	Fundamental model components.....	41
4.2.1.1.1	Inactivation kinetics.....	41
4.2.1.1.2	Disinfectant decay	42
4.2.1.1.3	Hydraulic behaviour	42
4.2.1.1.3.1	The N-Continuous Stirred Tank Reactors (N-CSTR) model	42
4.2.1.1.3.2	The Plug Flow with Dispersion (PFD) model	43
4.2.1.1.3.3	Model adjustments to experimental tracer curves	43
4.2.1.2	Description of predictive inactivation models	44
4.2.1.2.1	RTD-based models	44
4.2.1.2.1.1	The Segregated Flow Analysis (SFA).....	44
4.2.1.2.1.2	The Micro-Mixing Analysis (MMA)	45
4.2.1.2.1.3	The Partially Segregated model (Pseg)	46
4.2.1.2.2	US EPA models.....	47
4.2.1.2.2.1	The T10 model.....	47
4.2.1.2.2.2	The Extended T10 model	48
4.2.1.2.2.3	The Extended CSTR model.....	48
4.2.2	Pilot-scale disinfection experiments.....	49
4.2.2.1	Pilot unit configuration.....	49
4.2.2.2	Hydraulic behaviour	49
4.2.2.3	Disinfectant decay and inactivation kinetics	50
4.2.2.4	Pilot-scale Disinfection Assays.....	50
4.3	Results and Discussion.....	51
4.3.1	Selection of a macromixing hydraulic model to fit tracer tests.....	51
4.3.1.1	Adjustment to tracer test results	51

4.3.1.2	Impact of macromixing model on the predictions of inactivation	53
4.3.2	Comparing the predictions from various inactivation models	54
4.3.3	Validation of predictive inactivation models	58
4.3.3.1	Assays conducted under low disinfectant decay condition	58
4.3.3.2	Assays conducted under high disinfectant decay condition	60
4.3.4	Recommendations to water utilities	62
4.4	Conclusions	65
	Acknowledgements	66
	References	66
CHAPITRE 5	RÉSULTATS COMPLÉMENTAIRES	69
5.1	Influence des paramètres de calcul sur l'inactivation obtenue avec le modèle SFA	69
5.1.1	Impact de la méthode d'intégration	69
5.1.2	Impact du pas de temps	71
5.1.3	Partie à considérer de la Distribution des Temps de Séjour (DTS)	73
5.2	Courbes de traçage supplémentaires et impact du débit	75
5.2.1	Ajustement des courbes de traçage supplémentaires	75
5.2.2	Impact du débit sur les performances hydrauliques	77
5.3	Niveau de ségrégation dans les réacteurs de désinfection	79
5.3.1	Diffusivité et niveau de ségrégation des principaux désinfectants	79
5.3.2	Mélange à l'échelle microscopique	81
5.4	Installation en usine	82
5.4.1	Exemple de mise en place en usine	82
5.4.2	Exemple d'utilisation	85
CHAPITRE 6	DISCUSSION GÉNÉRALE	88

CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS	90
RÉFÉRENCES	91

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 4.1: WTPs and pilot-scale contactor characteristics with the macromixing parameters obtained	53
Tableau 4.2: Inactivation predictions in worst and best conditions according to Micro-Mixed Analysis	54
Tableau 4.3: Measured kinetic parameters.....	59
Tableau 5.1: Caractéristiques des essais de traçage et paramètres ajustés des modèles	77
Tableau 5.2: Nombre de ségrégation et diffusivité des principaux désinfectants	80

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1: Illustration des phénomènes de court-circuitages et de zones mortes (adapté de COMSOL [11])	7
Figure 1-2: Fonctionnement du modèle N-CSTR	9
Figure 1-3: Fonctionnement du modèle N-CSTR compartimenté (extrait de Martin-Dominguez et al. [16])	11
Figure 1-4: Illustration du modèle SFA (adapté de Fogler [19])	14
Figure 1-5: Illustration du modèle MMA (adapté de Fogler [19])	14
Figure 1-6: Résumé des concepts de mélanges macroscopique et microscopique	16
Figure 4-1: Schematic of the experimental pilot-scale contactor	49
Figure 4-2: Cumulative RTDs from 4 Water Treatment Plants (WTP) and the pilot-scale contactor, adjusted with N-CSTR and PFD models	52
Figure 4-3: Predicted inactivation levels for poor/good hydraulic efficiencies and low/high disinfectant decay	58
Figure 4-4: Comparison of modelled and experimental results for low disinfectant decay condition. For modelled results, whisker-boxes were obtained from 200 bootstrap predictions accounting for uncertainty in bench-scale disinfectant decay and inactivation kinetics.	60
Figure 4-5: Comparison of modelled and experimental results for high disinfectant decay	62
Figure 4-6: Procedure for evaluating the disinfection performance in reactive contactor	64
Figure 4-7: Correlation between L/W and N	65
Figure 5-1: Impact de la méthode d'intégration sur le pas de temps nécessaire	70
Figure 5-2: Pas de temps à utiliser pour le modèle SFA	72
Figure 5-3: Partie de la DTS déterminant l'inactivation	74
Figure 5-4: DTS cumulatives ajustées avec les modèles N-CSTR et PFD	76
Figure 5-5: Impact du débit sur les performances hydrauliques	78

Figure 5-6: Entrées et étapes de calcul de l'inactivation pour un contacteur d'ozone.....	83
Figure 5-7: Impact de la perte du procédé physico-chimique et mesures correctives	85
Figure 5-8: Impact de la perte des UV et de l'ozonation et mesures correctives.....	86
Figure 5-9: Diagramme décisionnel selon la disponibilité des équipements	87

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ADR	Axial dispersion reactor model
CFD	Computational fluid dynamics
CSTR	Continuous stirred tank reactor
DTS	Distribution des temps de séjour
ESS	Error sum of squares
HRT	Hydraulic retention time
IDDF	Integrated disinfection design framework
LT2SWTR	Long term 2 surface water treatment rule
MMA	Micro-mixed analysis
pCBA	p-chlorobenzoic acid
PFD	Plug flow with dispersion
PFR	Plug flow reactor
Pseg	Modèle partiellement ségrégué
QMRA	Quantitative microbiological risk assessment
RQEP	Règlement sur la qualité de l'eau potable
RTD	Residence time distribution
SFA	Segregated flow analysis
SWTR	Surface water treatment rule
THM	Trihalométhanes
TRH	Temps de rétention hydraulique
US EPA	United States Environmental Protection Agency
UV	Ultraviolet
WTP	Water treatment plant

INTRODUCTION

L'objectif primordial des installations de purification de l'eau est de rendre l'eau potable, c'est-à-dire propre à la consommation. Le risque lié à la consommation de l'eau produite doit être minimisé autant que techniquement et économiquement possible.

Le risque principal est assurément le risque microbiologique. L'eau distribuée doit contenir suffisamment peu de microorganismes pathogènes viables afin que le risque d'être infecté en buvant cette eau soit inférieur à un seuil jugé acceptable (correspondant à 1 personne sur 10 000 infectée par année [1]). Les objectifs de traitement des installations d'eau potable sont donc fixés en fonction de la qualité de l'eau brute prélevée afin d'assurer une eau produite qui respecte le seuil maximum de risque toléré. Ainsi, plus une eau brute contient de microorganismes pathogènes (ou d'indicateurs de ces microorganismes), plus l'installation de potabilisation s'approvisionnant avec cette eau a des objectifs de traitement élevés qui permettent de diminuer cette concentration à un niveau acceptable. La réduction de la concentration de microorganismes pathogènes viables dans l'eau peut se faire de plusieurs manières. Ils peuvent être retirés physiquement de l'eau (par filtration, coagulation-décantation, etc.), inactivés par traitement physique (rayons ultraviolets, ultrasons, etc.) et/ou détruits par traitement chimique (ajout de désinfectants). Même si beaucoup d'installations sont dotées de systèmes de filtration et que les ultraviolets (UV) sont de plus en plus employés (du fait de leur efficacité sur les parasites), l'ajout de désinfectant reste néanmoins la voie principale pour inactiver les microorganismes pathogènes. Il est donc indispensable de disposer d'une méthode de calcul des performances de désinfection qui soit fiable et permette de vérifier l'atteinte des objectifs de traitement.

Au Québec, ces objectifs de traitement ont été récemment rehaussés lors de la mise à jour du Règlement sur la Qualité de l'Eau Potable (RQEP) [2]. Le nouveau règlement impose également que toutes les installations de traitement d'eau potable desservant plus de 20 000 personnes soient munies d'un logiciel de calcul en continu des performances de désinfection. Dans cette optique, il apparaît justifié de s'interroger sur la méthode de calcul des performances à intégrer à ce logiciel. La méthode réglementaire est réputée pour être simpliste et ultra conservatrice. En conséquence, l'utilisation d'une méthode plus réaliste dans le logiciel pourrait permettre, en plus de renseigner sur la performance réelle du procédé, d'optimiser le fonctionnement de l'usine. Pour faciliter

l'implantation du logiciel, le modèle à la base du calcul devrait être relativement simple et peu demandant du point de vue des capacités informatiques requises (calcul et mémoire).

Par ailleurs, les stations de traitement d'eau potable doivent également atteindre, en plus de leurs objectifs d'élimination de microorganismes, des objectifs concernant la qualité chimique de l'eau distribuée. En effet, après le risque microbiologique, le risque chimique est le plus important. Il s'agit, en autres, de respecter les normes concernant les sous-produits de désinfection, tels que les THM (trihalométhanes), et certains composés chimiques (pesticides, métaux, etc.) [2]. De plus, le contrôle des paramètres organoleptiques (goût, odeur, couleur, etc.) de l'eau distribuée aux consommateurs fait également partie des préoccupations des responsables de stations. Enfin, la problématique de l'enlèvement des contaminants émergents (produits pharmaceutiques, toxines algales, etc.) est de plus en plus abordée et certains composés sont même désormais normés (norme sur les microcystines dans le RQEP corrigé). Les désinfectants (en particulier l'ozone) sont reconnus pour être efficace sur ces types de micro-contaminants. Cependant, en l'absence d'une méthode de calcul simple et fiable pour le faire, les installations de traitement d'eau potable au Québec n'évaluent pas leurs performances d'enlèvement de ces composés.

Dans ce mémoire vont être présentés les différents éléments qui interviennent dans le calcul des performances des procédés de désinfection. Les modèles impliqués vont être étudiés et comparés. Une analyse critique des méthodes actuelles de calcul des performances de désinfection va être menée et une nouvelle approche sera proposée.

CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE

La revue de littérature va servir en premier lieu à présenter les fondements du calcul de l'inactivation des microorganismes. Suite à cela, une analyse critique des méthodes existantes va être menée. Le calcul de l'enlèvement des contaminants et sa similitude avec celui des microorganismes sera ensuite abordé. Enfin, les objectifs et hypothèses de recherche découlant de cette revue critique seront énoncés.

1.1 Fondements du calcul de l'inactivation

Plusieurs éléments sont à considérer pour effectuer le calcul de l'inactivation dans un contacteur réel : les cinétiques d'inactivation, les cinétiques de décroissance du désinfectant mais également les phénomènes hydrauliques agissant au sein du réacteur.

1.1.1 Cinétiques d'inactivation

Plusieurs modèles ont été développés au cours de l'histoire afin de décrire la relation entre l'inactivation de microorganismes et la présence de désinfectant. Les principaux modèles utilisés dans le traitement de l'eau potable sont présentés ci-dessous.

1.1.1.1 Modèle de Chick-Watson

Introduit en 1908, le modèle de Chick-Watson [3, 4] est encore à l'heure actuelle le modèle le plus connu et le plus employé. Il décrit l'inactivation des microorganismes dans un réacteur en cuvette selon l'équation suivante :

$$\frac{dI}{dt} = -k_L \cdot C^n \cdot t \quad \text{Équation 2.1}$$

où I représente la concentration de microorganismes viables et t le temps. k_L est la constante de létalité du microorganisme (aussi appelée constante de mortalité ou d'inactivation). Elle dépend principalement du type de microorganisme, du désinfectant utilisé, de la température et du pH. Elle peut être également influencée par les autres caractéristiques et composants présents dans l'eau. C est la concentration du désinfectant et n représente le coefficient de dilution. Ce dernier est généralement posé égal à 1.

L'équation précédente, intégrée à partir de la concentration initiale de microorganisme (I_0) au temps zéro, pour une concentration en désinfectant constante, permet d'obtenir la concentration de microorganismes viables I au temps T :

$$I = I_0 \exp(-k_L \cdot C \cdot T) \quad \text{Équation 2.2}$$

Exprimée en termes de log d'inactivation par rapport à la concentration initiale de microorganismes, l'expression précédente conduit à :

$$-\log\left(\frac{I}{I_0}\right) = k_{10} \cdot C \cdot T \quad \text{Équation 2.3}$$

où k_{10} est la constante de létalité exprimé en base 10, soit k_L divisée par $\ln(10)$. L'inactivation (en log) est donc ici directement proportionnelle au produit $C \cdot T$. C'est cette équation qui est à la base du concept de CT utilisé dans la méthode réglementaire au Québec.

La relation de Chick-Watson corrèle assez bien les données expérimentales pour un certain nombre de désinfectants et de microorganismes. Cependant, dans plusieurs conditions (microorganismes résistants, forte turbidité, présence d'agglomérats, etc.) des déviations de cette relation linéaire sont observées. Les modèles qui suivent permettent de tenir compte de ces exceptions.

1.1.1.2 Modèle de Hom

Le modèle de Hom [5], introduit en 1972, définit l'inactivation comme égale à :

$$-\log\left(\frac{I}{I_0}\right) = k_{10} \cdot C^n \cdot T^m \quad \text{Équation 2.4}$$

En ajoutant l'exposant m au temps, le modèle de Hom permet de décrire les courbes en épaule ($m > 1$) ou en traînée ($m < 1$) qui sont observées en conditions réelles. Cependant, en plus d'ajouter un paramètre supplémentaire (et donc d'augmenter le niveau de complexité), la détermination de m est faite de manière purement empirique et dépend intégralement des conditions du moment. Même si ce paramètre était déterminé pour chaque usine et microorganisme à plusieurs périodes de l'année, cela ne saurait représenter les conditions changeantes des caractéristiques de l'eau et des microorganismes.

1.1.1.3 Modèle Rationnel (« Rational Model »)

Utilisé pour la première fois en 1981 [6], le modèle Rationnel décrit la cinétique d'inactivation de la manière suivante :

$$\frac{dI}{dt} = -k_L \cdot C^n \cdot I^x \quad \text{Équation 2.5}$$

De la même manière que pour le modèle de Hom, ce modèle introduit un paramètre supplémentaire, x . A l'inverse de m , des valeurs de $x > 1$ permettent de décrire les phénomènes de traînée et des valeurs de $x < 1$ servent à s'ajuster à des cinétiques en épaule. Le modèle Rationnel présente les mêmes limites que le modèle de Hom. Plus complexe, il ne permet quand même pas de décrire de manière à la fois continue et précise les cinétiques d'inactivation qui varient selon les changements de la matrice.

Ces trois modèles, tel que présentés, ne tiennent pas compte de la décroissance du désinfectant pourtant inévitable en conditions réelles. Ils ne prennent pas non plus en compte les phénomènes hydrauliques et ne s'appliquent que pour des réacteurs en cuvée ou à écoulement piston. La partie suivante va décrire les deux principaux modèles de décroissance de désinfectant dans l'eau et discuter de la possibilité de les coupler aux modèles de cinétique d'inactivation.

1.1.2 Décroissance du désinfectant

1.1.2.1 Décroissance du 1^{er} ordre avec demande immédiate

Pour décrire la décroissance d'un désinfectant dans un réacteur en cuvée, une cinétique de 1^{er} ordre est très souvent utilisée, du fait de sa simplicité et de ses bons résultats. Elle s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{dC}{dt} = -k_D \cdot C \quad \text{Équation 2.6}$$

où k_D est la constante de décroissance du désinfectant et C la concentration de désinfectant. Intégrée à partir de la concentration initiale de désinfectant (C_0) au temps zéro, cette équation résulte en :

$$C = C_0 \exp(-k_D \cdot t) \quad \text{Équation 2.7}$$

Cette dernière équation peut être facilement intégrée dans les modèles de cinétique d'inactivation précédents, comme montré par Haas et al. [7]. Les modèles ainsi développés permettent donc de

prendre en compte à la fois les cinétiques d'inactivation et de décroissance (mais toujours pas les phénomènes hydrauliques).

Cependant, il est rare que la concentration de désinfectant dosée soit égale à la concentration initiale mesurée, hormis dans de l'eau pure. Dans des eaux réelles, de nombreux composés réagissent très rapidement avec les désinfectants et créent une demande immédiate. Cette demande immédiate correspond à la différence entre la dose ajoutée de désinfectant et celle mesurée. La demande immédiate est fortement influencée par les caractéristiques de l'eau et par la dose de désinfectant ajoutée et elle doit donc être déterminée d'après les mesures de résiduels de désinfectant. De même pour k_D qui dépend, en plus de la température, de la demande immédiate et par conséquent des caractéristiques de la matrice.

1.1.2.2 Décroissance du 1^{er} ordre précédée d'une décroissance de 2^e ordre

Pour palier le concept simplificateur de demande immédiate, qui voudrait qu'une partie du désinfectant soit instantanément consommée, la décroissance du désinfectant peut être décrite par une décroissance du 2^e ordre suivie de la décroissance de 1^{er} ordre [8, 9], telle que :

$$\frac{dC}{dt} = -k_R \cdot R \cdot C - k_D \cdot C \quad \text{Équation 2.8}$$

où k_R est la constante de décroissance du 2^e ordre et R la concentration de la fraction de la matière organique réagissant rapidement avec le désinfectant. Bien que plus réaliste, ce modèle présente plusieurs inconvénients. Tout d'abord, les cinétiques décrivant la première phase de décroissance sont trop rapides pour être mesurées convenablement [10] et la valeur de k_R doit donc être posée d'après la littérature. Étant donné l'influence de nombreux paramètres sur cette constante, cette approche apparaît limitante. L'autre désavantage majeur de ce modèle est son impossibilité à être couplé directement aux modèles de cinétique d'inactivation présentés dans la partie précédente car il ne permet pas une intégration analytique de la concentration de désinfectant C .

L'ensemble des modèles présentés jusqu'à présent ne s'applique que dans des réacteurs en cuvette ou des réacteurs à écoulement piston, soit lorsque l'hydraulique est parfaite. En pratique, il est nécessaire de considérer en plus les phénomènes hydrauliques agissant dans les réacteurs, qui peuvent par exemple être à l'origine de court-circuitages. Dans ce cas là, une partie de l'eau aura résidé moins de temps que prévu en théorie et l'efficacité de désinfection en sera donc amoindrie.

1.1.3 Phénomènes hydrauliques

Les phénomènes hydrauliques agissant au sein d'un réacteur peuvent être décrits d'après le niveau de mélange à deux échelles : macroscopique et microscopique. Le mélange macroscopique traduit le comportement hydraulique global du réacteur alors que le mélange microscopique définit le degré d'interaction à l'échelle moléculaire. Une description plus approfondie est fournie dans les paragraphes qui suivent.

1.1.3.1 Mélange à l'échelle macroscopique

1.1.3.1.1 Description

Le mélange macroscopique caractérise les phénomènes hydrauliques responsables des différents temps de séjour observés lors d'essais de traçage en contacteur réel. Ces phénomènes sont communément appelés court-circuitages et zones de recirculation selon qu'ils résultent en un temps de séjour dans le réacteur plus court ou plus long que le Temps de Rétention Hydraulique (TRH) théorique. Ce-dernier, calculé comme le volume du réacteur divisé par le débit, correspond lorsque l'hydraulique est parfaite (aucune dispersion) au temps de séjour dans le réacteur de l'ensemble du débit. La figure 1-1 illustre les phénomènes de court-circuitages et de zones de recirculation (aussi appelées zones mortes ou zones de stagnation) dans un contacteur réel.

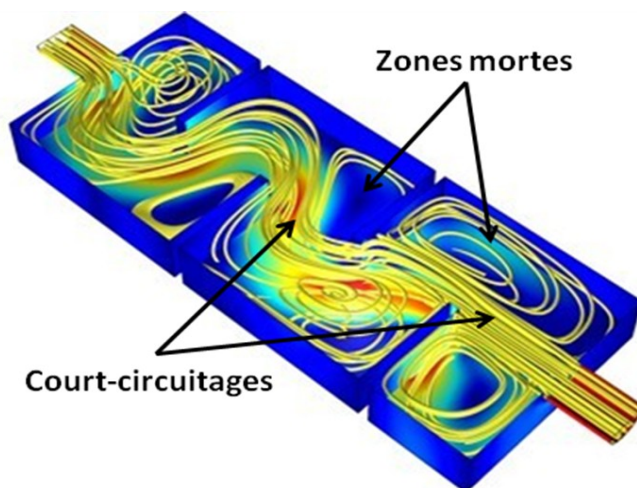


Figure 1-1: Illustration des phénomènes de court-circuitages et de zones mortes (adapté de COMSOL [11])

1.1.3.1.2 Mesure expérimentale

Comme mentionné, le niveau de mélange macroscopique peut être mesuré à l'aide d'essais de traçage. Deux types d'essais de traçage existent. L'essai de type impulsion (« pulse test ») consiste à injecter en une seule fois une quantité définie de traceur et à mesurer sa concentration à la sortie du réacteur en fonction du temps. Ce type d'essai permet d'obtenir la Distribution des Temps de Séjour (DTS) dans le réacteur. L'essai de type échelon (« step test ») consiste quant à lui à injecter en continue une certaine concentration de traceur et à mesurer la concentration en sortie jusqu'à ce que celle-ci soit identique à la concentration initiale. Cet essai permet de produire la Distribution des Temps de Séjour cumulative, qui est simplement l'intégrale cumulative de la DTS. Différentes sortes de traceurs peuvent être utilisées, les plus couramment employés en traitement de l'eau étant les fluorures et le chlorure de sodium. Plus d'informations concernant les essais de traçage et leur mise en place sont fournies par Teehy [12]. Les recommandations émises par Zhang et al. [13] devraient également être considérées lors de la réalisation d'essais de traçage.

Les essais de traçage offrent des informations cruciales pour caractériser l'hydraulique et renseignent sur le temps de séjour dans le réacteur de chaque élément du fluide, un élément étant une fraction du débit entrant composé d'un certain nombre de molécules. Cependant, les essais de traçage réalisés en usine ne sont pas toujours directement exploitables pour le calcul de l'inactivation du fait du manque de continuité et de la variabilité des mesures. Cette variabilité s'explique en partie par le bruit de fond changeant que constitue la matrice d'eau à laquelle on ajoute un traceur et par la variabilité intrasèque des méthodes analytiques. Par exemple, l'eau peut initialement déjà contenir des fluorures dont la concentration est susceptible de varier durant l'essai de traçage. De ce fait, il est souvent nécessaire de recourir à des modèles pour lisser la courbe de traçage. De plus, l'utilisation de modèles permet de faciliter l'interprétation des essais de traçage et de caractériser de façon plus uniforme et comparable les performances hydrauliques du contacteur.

1.1.3.1.3 Modèles

Il existe de nombreux modèles de réacteurs pour décrire le comportement réel de bassins : réacteur piston avec dispersion, réacteurs complètement mélangés en série, réacteurs à

compartiments, etc. [14]. Seuls quelques modèles (les principaux utilisés en traitement de l'eau potable) sont présentés par la suite.

1.1.3.1.3.1 Modèle N-CSTR

Le modèle N-CSTR, ou N réacteurs complètement mélangés en série, est un des modèles les plus connus du fait de sa relative simplicité et de son efficacité à s'ajuster à de nombreux essais de traçage. La figure 1-2 illustre le principe de ce modèle.

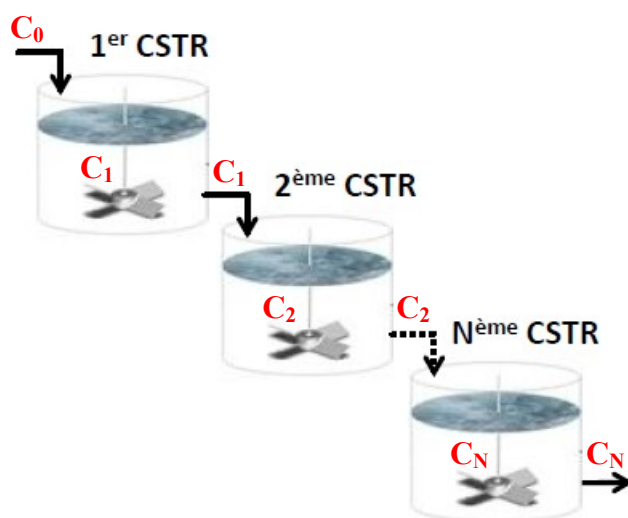


Figure 1-2: Fonctionnement du modèle N-CSTR

Le modèle considère que le contacteur est composé de N réacteurs de même volume complètement mélangés en série. Chaque CSTR est considéré parfaitement mélangé (à l'échelle macroscopique et microscopique) et la concentration à l'intérieur du réacteur est donc égale à la concentration sortante. En théorie, le CSTR représente la pire performance hydraulique possible au niveau du mélange macroscopique, la meilleure étant le réacteur à écoulement piston (en anglais PFR pour « Plug Flow Reactor »). Lorsque le nombre de CSTR en série tend vers l'infini, le comportement hydraulique de l'ensemble tend vers celui d'un réacteur piston.

Le modèle N-CSTR est décrit par la formule suivante, dont la démonstration peut être trouvée dans l'ouvrage de Levenspiel [14] :

$$E(t) = \left(\frac{t}{TRH} \right)^N \frac{N^{N+1}}{t N!} \exp\left(\frac{-Nt}{TRH} \right) \quad \text{Équation 2.9}$$

où la fonction E représente la DTS et N correspond au nombre de CSTR en série et est nécessairement entier (du fait de l'utilisation de la fonction factorielle notamment). Ce dernier

point représente l'inconvénient majeur du modèle N-CSTR classique. En effet, lorsque le nombre de CSTR en série est faible, l'allure de la DTS est considérablement modifiée par l'ajout ou le retrait d'un CSTR. Ainsi, lorsque les performances hydrauliques sont basses, le modèle N-CSTR ne réussit pas à décrire convenablement les résultats des essais de traçage [15].

1.1.3.1.3.2 Modèle PFD

L'autre modèle couramment employé pour décrire le comportement hydraulique de réacteurs réels est le modèle piston avec dispersion (en anglais « Plug Flow with Dispersion»). Plusieurs modèles PFD existent, dépendamment du niveau de dispersion et des hypothèses aux limites [14], mais tous dérivent de l'équation différentielle suivante :

$$\frac{\partial A}{\partial t} = D \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} - u \frac{\partial A}{\partial x} \pm r_A \quad \text{Équation 2.10}$$

où A est la concentration du composé, D le coefficient de dispersion longitudinal (qui intervient dans le calcul du nombre de Péclet), x la distance dans le sens d'écoulement de la conduite, u la vitesse d'écoulement et r_A le taux de réaction (nul pour un composé inerte tel qu'un traceur).

La résolution de cette équation pour différentes conditions et les modèles qui en découlent sont détaillés dans le livre de Levenspiel [14]. Les modèles obtenus pour des composés inertes sont relativement simples d'utilisation. La DTS générée par ces modèles dépend principalement de la valeur de D et pour des plages de dispersion définies, le modèle PFD permet donc de s'ajuster précisément à des résultats d'essais de traçage. Cependant, lorsqu'il s'agit de réactions d'ordre différent de 1 (comme celle de la désinfection), aucune solution analytique directe n'existe [14] et il faut donc passer par la résolution numérique d'équations différentielles.

1.1.3.1.3.3 Modèle N-CSTR compartimenté

Enfin, parmi les modèles proposés pour décrire les résultats d'essais de traçage de réacteur de désinfection figure le modèle N-CSTR compartimenté. Ce modèle, défini par Martin-Dominguez et al. [16], couple le modèle N-CSTR avec le modèle compartimenté présenté par Levenspiel [14], tel qu'illustré par la figure 1-3. Chaque CSTR comporte une partie de son volume total (V_i) qui est considérée comme une zone morte et où l'eau ne peut pas aller. La partie utilisable du réacteur correspond à la fraction M du volume total. En plus de cela, seule la fraction n du débit passe par le réacteur. La partie restante ($1 - n$) court-circuite entièrement le réacteur, soit continue comme s'il n'y avait aucun réacteur.

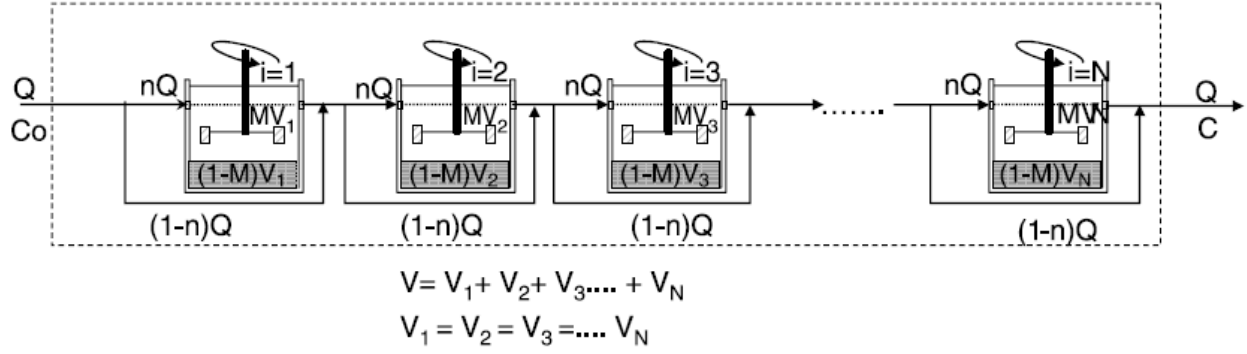


Figure 1-3: Fonctionnement du modèle N-CSTR compartimenté (extrait de Martin-Dominguez et al. [16])

La formule résultante est la suivante :

$$E(\theta) = \frac{Nn}{M} \sum_{i=1}^N \frac{N! e^{-\frac{nN\theta}{M}} \left(\frac{Nn\theta}{M}\right)^{i-1} (1-n)^{N-i} n^i}{(N-i)! i! (i-1)!} + (1-n) \delta\left(\frac{Nn\theta}{M}\right) \quad \text{Équation 2.11}$$

où θ représente le temps normalisé par rapport au TRH et δ est la fonction de Dirac.

En plus de présenter une formule considérablement plus sophistiquée que les modèles précédents, ce modèle requiert l'ajustement d'au-moins 3 paramètres (N , M et n). Malgré ce niveau de complexité beaucoup plus élevé, le modèle N-CSTR compartimenté ne parvient pas nécessairement à décrire parfaitement les résultats d'essais de traçage [16].

En résumé, différents modèles hydrauliques plus ou moins élaborés existent pour décrire le degré de mélange macroscopique dans un réacteur réel. Pourtant, la problématique du choix du modèle et de son ajustement à des données réelles d'essais de traçage n'a presque jamais été abordée (seuls Haas et al. en 1997 [17] ont étudié le sujet).

Les courbes de traçage permettent de décrire le niveau de mélange macroscopique mais ne sauraient définir à elles seules le degré de mélange qui a lieu à l'échelle microscopique. La partie qui suit va permettre d'expliciter le concept de mélange microscopique et de présenter les modèles qui lui sont associés.

1.1.3.2 Mélange à l'échelle microscopique

1.1.3.2.1 Description

Alors que le mélange macroscopique définit le temps de séjour de chaque élément dans le réacteur, le mélange microscopique caractérise le degré d'interaction entre les différents éléments sortant plus ou moins rapidement du réacteur. Cette information est particulièrement importante pour le traitement de l'eau potable, dans la mesure où l'inactivation des microorganismes est fonction de la concentration de désinfectant à laquelle ils sont exposés et non seulement du temps de séjour. Définir à quel point les éléments sortant le plus rapidement du réacteur se sont mélangés avec les autres éléments à proximité et en conséquence à quelle concentration de désinfectant les microorganismes ont été soumis apparaît donc crucial. Le paragraphe qui suit décrit les méthodes qui existent pour estimer le degré de mélange microscopique au sein d'un réacteur.

1.1.3.2.2 Mesure

La mesure du niveau de mélange microscopique ne peut pas être faite directement. Seules quelques méthodes indirectes basées sur le taux de conversion obtenu à la sortie du réacteur existent et permettent d'évaluer grossièrement le degré de mélange au niveau moléculaire. Même dans ce cas là, l'information obtenue permet uniquement de décrire de manière qualitative le mélange microscopique. Cette évaluation qualitative peut également être faite grâce au Nombre de Ségrégation (N_{seg}) introduit par Nauman en 1975 [18] :

$$N_{seg} = \frac{\phi \cdot r^2}{\pi^2 \cdot D \cdot TRH} \quad \text{Équation 2.12}$$

où ϕ est un facteur de forme normalement égal à 1, r correspond au rayon des éléments (ou gouttelettes dans le modèle de Nauman) et D est la diffusivité du composé dans le fluide (dans notre cas, la diffusivité du désinfectant dans l'eau). Comme détaillé dans le livre de Nauman et Buffham [15], le Nombre de Ségrégation peut être ramené à :

$$N_{seg} = \frac{\mu^{1.5}}{4 \pi^2 \cdot \rho^{1.5} \cdot \varepsilon^{0.5} \cdot D \cdot TRH} \quad \text{Équation 2.13}$$

où μ et ρ sont respectivement la viscosité dynamique et la masse volumique du fluide, et ε correspond au taux de dissipation de l'énergie par unité de masse du fluide. Ce dernier est égal à :

$$\varepsilon = \frac{\text{Puissance}}{V \cdot \rho} = \frac{Q \cdot \rho \cdot g \cdot h}{V \cdot \rho} = \frac{g \cdot h}{TRH} \quad \text{Équation 2.14}$$

où g est la constante d'accélération gravitationnelle et h est la perte de charge générée dans le réacteur. En remplaçant la viscosité dynamique par la viscosité cinématique du fluide ν et en utilisant l'équation 2.14, l'équation 2.13 peut être réécrite comme :

$$N_{seg} = \frac{\nu^{1.5}}{4 \pi^2 \cdot g^{0.5} \cdot h^{0.5} \cdot D \cdot TRH^{0.5}} \quad \text{Équation 2.15}$$

D'après la valeur de N_{seg} calculée et les critères développés par Nauman [18], il est donc a priori possible d'estimer le degré de mélange microscopique. Cependant, ces critères et ce Nombre de Ségrégation ont été déterminés de manière purement théorique par Nauman et il est donc difficile de juger de leur applicabilité réelle. Seuls quelques résultats pour des fluides extrêmement visqueux semblent corroborer cette approche [15]. De plus, bien qu'utile pour qualifier le niveau de mélange microscopique, le Nombre de Ségrégation n'est intégré dans aucun des modèles existants.

1.1.3.2.3 Modèles

La plupart des modèles hydrauliques ne tiennent pas explicitement compte du mélange microscopique. Celui-ci est implicitement défini d'après la structure et les hypothèses sous-jacentes du modèle, comme par exemple le nombre de réacteurs théoriques employés, leur comportement, leur disposition, etc. Seuls deux modèles définissent ouvertement pour une DTS donnée le niveau de mélange microscopique considéré, soit le modèle complètement ségrégué (appelé communément en anglais « Segregated Flow Analysis », SFA) et le modèle complètement mélangé (ou « Micro-Mixed Analysis », MMA en anglais). Ces deux modèles, SFA et MMA, simulent respectivement les deux extrêmes théoriques du mélange microscopique, soit aucun mélange ou complètement mélangé à l'échelle moléculaire. Ils sont succinctement présentés par la suite mais seront davantage détaillés dans l'article (en particulier les équations associées) et entièrement explicités lors de l'étude du degré de ségrégation dans les réacteurs de désinfection (présentée dans les « Résultats complémentaires »).

1.1.3.2.3.1 Segregated Flow Analysis (SFA)

Comme son nom l'indique, le modèle SFA considère que le fluide est complètement ségrégué, soit qu'il n'existe aucun mélange à l'échelle microscopique. Chaque élément du fluide est supposé être totalement isolé des autres éléments et aucune interaction entre des éléments de différents temps de séjour et de différentes compositions n'est possible. Le comportement de ce

modèle est illustré par la figure 1-4. Le réacteur est modélisé comme un réacteur à écoulement piston duquel s'échapperaient plus ou moins d'éléments, plus ou moins rapidement, en fonction de la DTS. L'ensemble des éléments qui s'échappent sont complètement mélangés les uns avec les autres et c'est ce qui sort du réacteur.

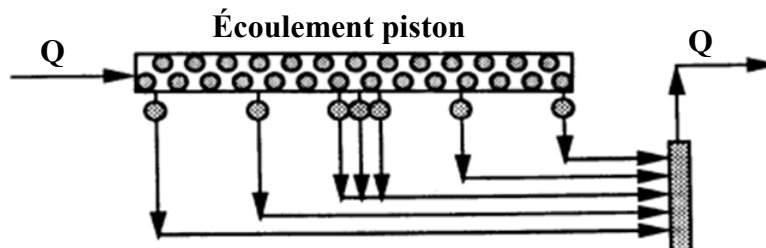


Figure 1-4: Illustration du modèle SFA (adapté de Fogler [19])

1.1.3.2.3.2 Micro-Mixed Analysis (MMA)

A l'inverse, le modèle MMA suppose que les éléments entrants dans le réacteur sont complètement mélangés avec les éléments avoisinants, et que ces éléments rentrent plus ou moins proche de la sortie du réacteur en fonction de la DTS. La figure 1-5 schématise le comportement de ce modèle. Comme pour le modèle SFA, le réacteur présente un comportement hydraulique de type piston, sauf que les éléments peuvent pénétrer dans le réacteur à différents emplacements (ceux séjournant le moins longtemps dans le réacteur entrant plus proche de la sortie, et inversement). Une fois entrés dans le réacteur piston, les éléments sont instantanément mélangés avec ceux déjà présents dans le réacteur et rendus à la même distance de la sortie.

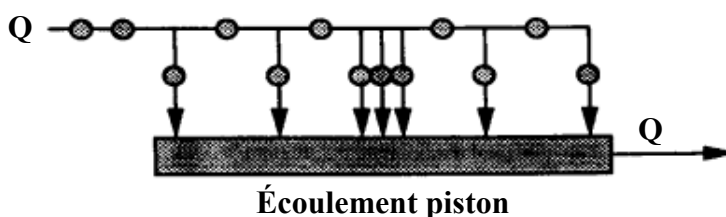


Figure 1-5: Illustration du modèle MMA (adapté de Fogler [19])

Il est à noter que le modèle CSTR classique correspond en fait à l'application du modèle MMA à une cuve : tous les éléments entrants dans la cuve sont complètement mélangés (à l'échelle microscopique également) aux éléments déjà présents.

1.1.3.3 Résumé

La figure 1-6 résume les concepts de mélanges macroscopique et microscopique, ainsi que les modèles qui y sont associés. L'abscisse représente le degré de mélange macroscopique dans le réacteur et l'ordonnée le niveau de mélange microscopique (ou à l'inverse, de ségrégation). Lorsque le niveau de mélange macroscopique est minimal (soit aucune dispersion), le réacteur se comporte comme un réacteur piston. Le degré de mélange microscopique n'a alors aucune importance car les éléments adjacents ont tous le même temps de séjour et la même composition. Quand le mélange macroscopique est maximal et que le fluide est complètement mélangé à l'échelle moléculaire, le réacteur se comporte alors comme un CSTR classique où les éléments entrants sont entièrement dissociés dans le contenu du réacteur. Par contre, un réacteur réel peut présenter une DTS identique à celle d'un CSTR sans toutefois se comporter de la même manière à l'échelle microscopique. Il est possible d'appliquer l'approche SFA à la DTS d'un CSTR. En effet, au lieu de se dissocier complètement, les éléments pourraient rester ségrégués dans le réacteur et ne se mélanger qu'à la sortie. Ce type de réacteur est qualifié de CSTR complètement ségrégué. Ces trois modèles (piston, CSTR et CSTR complètement ségrégué) définissent la plage sur laquelle se situent les réacteurs réels. Plus le mélange macroscopique est faible, plus le comportement du réacteur se rapproche de celui d'un réacteur piston ou d'un très grand nombre de CSTR en série. Pour des niveaux de mélange macroscopique intermédiaires, les modèles MMA et SFA représentent les niveaux de mélange microscopique maximum et minimum possibles. Pour des réactions d'ordre supérieur à 1 (telle que la réaction d'inactivation décrite par Chick-Watson), Fogler [19] a démontré de manière théorique que le modèle SFA donnait l'enlèvement maximum possible et le modèle MMA l'enlèvement minimum possible pour une DTS donnée. Ceci a été confirmé par les simulations réalisées par Craik [20] concernant l'inactivation de *Cryptosporidium* dans un contacteur d'ozone.

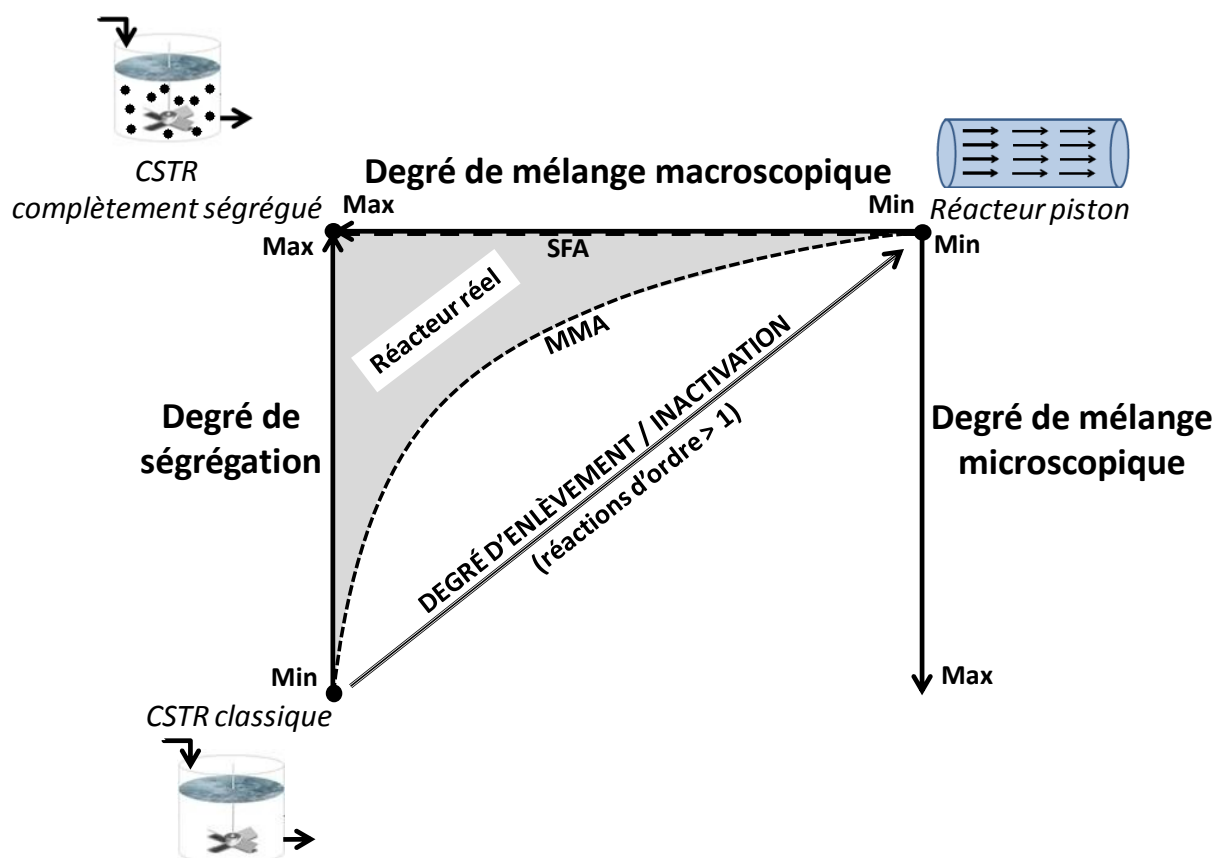


Figure 1-6: Résumé des concepts de mélanges macroscopique et microscopique

En résumé, les différentes composantes du calcul de l'inactivation ont été présentées et les principaux modèles utilisés pour les décrire ont été analysés. La partie suivante va recenser les différentes méthodes de calcul des performances de désinfection existantes. Ces méthodes vont être analysées de manière critique d'après leurs résultats et leurs fondements théoriques.

1.2 Méthodes de calcul existantes

Plusieurs méthodes de calcul ont été proposées dans la littérature pour le calcul des performances de désinfection. En premier seront présentées les méthodes de calcul réglementaires en application au Québec et aux États-Unis. Ensuite seront étudiées les méthodes de calcul alternatives avancées par certains auteurs.

1.2.1 Méthodes réglementaires

Parmi les méthodes réglementaires, la méthode du T10 est de loin la plus connue et la plus employée dans les usines de traitement d'eau potable d'Amérique du Nord.

1.2.1.1 Méthode du T10

Elle s'appuie sur le concept du C*T dérivé de l'équation de Chick-Watson. Celui-ci permet de définir, pour un niveau d'inactivation souhaité, la dose de désinfectant nécessaire pour un certain temps de contact, et inversement. Deux différences majeures existent entre l'équation 2.3 tirée de la relation de Chick-Watson et celle proposée en 1989 par l'Agence de Protection de l'Environnement américaine (en anglais « United-States Environmental Protection Agency », US EPA) et présentée ci-dessous :

$$-\log \left(\frac{I}{I_0} \right) = k_{10} \cdot C_{rés.} \cdot TRH \cdot \frac{T10}{T} \quad \text{Équation 2.16}$$

Tout d'abord, dans l'objectif d'adapter l'équation 2.3 à un réacteur réel, un facteur d'efficacité hydraulique, noté T10/T, a été intégré au calcul. Celui-ci correspond au rapport entre le temps nécessaire pour que 10% de l'eau sorte du réacteur (estimé à l'aide d'essais de traçage) et le TRH théorique [21]. Cette méthode calcule donc une performance de désinfection pour tout le réacteur à partir du C*T10, soit en considérant que l'ensemble de l'eau a séjourné un temps égal au T10. Cette méthode sous-estime donc le temps de séjour pour 90% du débit mais elle surestime aussi le temps de séjour des 10 premiers pourcents. L'autre modification concerne l'utilisation dans l'équation de la concentration résiduelle à la sortie du réacteur ($C_{rés.}$). Étant donné que dans des eaux naturelles la décroissance du désinfectant est inévitable, la méthode réglementaire a choisi d'utiliser la concentration à la sortie du réacteur pour être conservateur par rapport à la concentration à laquelle sont exposés les microorganismes. De ce fait, cette méthode sous-estime la concentration d'exposition.

Ces hypothèses ne sont pas sans impact sur l'inactivation calculée et leur bien-fondé peut être remis en question. En 1992, Lev et Regli [22] ont comparé pour différentes performances hydrauliques et différents niveaux d'inactivation les résultats obtenus avec cette méthode par rapport aux résultats de la méthode SFA. Leurs résultats ont montré qu'à partir de 2 log d'inactivation, la méthode du T10 pouvait conduire à des surestimations et qu'à 1 log, elle sous-estimait presque systématiquement de 0.5 log l'inactivation. En 1993, Lawler et Singer [23] ont de nouveau mis en évidence les limites de la méthode du T10 en comparant ses résultats à ceux d'un CSTR, d'une suite de CSTR en série et d'un réacteur piston. Peu importe le nombre de CSTR en série utilisé pour représenter la performance hydraulique du réacteur, la méthode du T10 conduisait à des sous-estimations lorsque le taux d'inactivation était faible et à des

surestimations pour des taux d'inactivation élevés. Plus récemment, Smeets et al. [24] ont comparé pour différentes températures les prévisions du modèle T10 aux mesures expérimentales d'inactivation d'*E. coli* obtenues dans les bassins d'ozonation de l'usine de traitement d'eau potable d'Amsterdam. Ils ont ainsi montré que le modèle T10 surestimait grandement l'inactivation obtenue avec plus de 20 log prédit contre seulement 2 à 3 log d'inactivation mesurés. Malgré tout cela, la méthode du T10 est encore la méthode réglementaire utilisée au Québec. En 2010, l'US EPA a introduit dans son Guide associé au LT2SWTR [25] deux nouvelles méthodes pour tenter de corriger ces limites : la méthode *Extended* T10 et la méthode *Extended* CSTR. La première est présentée ci-dessous.

1.2.1.2 Méthode *Extended* T10

Comme son nom l'indique, la méthode *Extended* T10 se base également sur le principe du C*T10. Son unique différence avec la méthode du T10 est qu'elle interpole la concentration de désinfectant entre les points de mesure pour calculer l'inactivation pour chaque chambre. Alors que la méthode du T10 ne permet que d'utiliser la concentration résiduelle réellement mesurée, la méthode *Extended* T10 permet donc avec seulement trois analyseurs de désinfectant d'estimer la concentration résiduelle de chaque chambre. L'équation 2.16 est ensuite utilisée pour calculer l'inactivation dans chaque chambre en utilisant le T10/T mesuré pour l'ensemble du contacteur. Les informations complémentaires concernant la méthode d'interpolation sont disponibles dans le Guide du LT2SWTR [25].

Ainsi, la méthode *Extended* T10 corrige une des limites du modèle T10, soit la prise en compte de la décroissance du désinfectant. Cependant, en se basant sur le concept du T10, elle présente les mêmes faiblesses au niveau de l'hydraulique. Aucune validation ou comparaison n'a encore été réalisée sur cette méthode proposée comme alternative à la méthode du T10.

1.2.1.3 Méthode CSTR

La méthode CSTR, mentionnée dans le Guide de l'EPA de 1989 [1] comme une alternative possible mais non recommandée (car jugée trop conservatrice), considère que chaque chambre se comporte comme un réacteur complètement mélangé (à l'échelle microscopique aussi). L'inactivation est alors calculée d'après la formule suivante :

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1}{1 + k_L \cdot C_{rés.} \cdot TRH_{chambre}} \quad \text{Équation 2.17}$$

L'inactivation doit être calculée chambre par chambre mais comme pour la méthode du T10, la concentration résiduelle utilisée est celle physiquement mesurée. Comme beaucoup d'usines ne mesurent la concentration de désinfectant qu'à la sortie du contacteur, cette méthode devient pénalisante lorsque la décroissance du désinfectant est importante. La concentration mesurée ne reflète alors plus les concentrations de désinfectant présentes dans le contacteur.

En plus de cela, l'hypothèse que chaque chambre se comporte comme un CSTR peut être questionnée. De prime abord, un CSTR étant censé représenter la pire performance hydraulique, cette hypothèse peut apparaître excessivement conservatrice. Néanmoins, Nauman et Buffham [15] ont montré que les performances hydrauliques pouvaient être inférieures à celle d'un CSTR. Ils ont même défini la notion de court-circuitage de cette manière. Par ailleurs, Kim et al. [26] ont constaté que la performance hydraulique du contacteur qu'ils étudiaient était celle de 7 CSTR en séries quand celui-ci était composé de 10 chambres consécutives. Il semble donc difficile de préjuger de la performance hydraulique d'une chambre de contacteur. Dans ces conditions, la méthode CSTR pourrait conduire à des sous-estimations (voire des surestimations) des performances hydrauliques, et donc en conséquence de l'inactivation.

1.2.1.4 Méthode *Extended* CSTR

Comme pour le modèle *Extended* T10, l'US EPA a élaboré le modèle *Extended* CSTR pour palier la mauvaise évaluation de la décroissance du désinfectant par le modèle CSTR. Sur le même principe, la concentration de désinfectant est interpolée à partir de trois mesures pour utiliser une concentration plus proche de celle réellement présente dans la chambre. Le modèle d'interpolation est cependant différent de celui utilisé dans la méthode *Extended* T10. Alors que cette dernière considère que la décroissance du désinfectant s'effectue comme dans un réacteur piston, la méthode *Extended* CSTR suppose que la décroissance a lieu comme dans un réacteur N-CSTR (N correspondant au nombre de chambre du contacteur). Toutes les informations concernant la mise en place de cette méthode sont fournies dans le Guide de l'US EPA [25].

Mis à part une meilleure prise en compte de la décroissance du désinfectant, la méthode *Extended* CSTR lève donc les mêmes doutes concernant la solidité de l'hypothèse sur l'hydraulique. Smeets et al. [24] ont comparé, en plus de la méthode du T10, les résultats de cette méthode aux inactivations mesurées. Ils ont montré que la méthode *Extended* CSTR menait à des surestimations importantes en prédisant de 5 à 8 log contre les 2 à 3 log mesuré. Ces prédictions

ont pourtant été obtenues en utilisant les cinétiques d'inactivation et de décroissance mesurées dans les mêmes conditions que celles de l'usine. Il semblerait donc que la différence obtenue résulte d'une mauvaise prise en compte de l'hydraulique.

Les méthodes réglementaires en place présentent l'avantage de la simplicité. Cependant, du fait de leurs hypothèses simplificatrices, elles ne prennent pas en considération comme il le faudrait l'ensemble des phénomènes (cinétiques et hydrauliques) déterminant le niveau d'inactivation final.

1.2.2 Méthodes alternatives

1.2.2.1 Méthode IDDF

Parmi les méthodes alternatives proposées dans la littérature, la méthode IDDF (« Integrated Disinfection Design Framework ») est probablement la plus documentée. Présentée en 1998 par Bellamy et al. [27], elle intègre les trois composantes du calcul de l'inactivation. Pour décrire les cinétiques d'inactivation et de décroissance du désinfectant, elle utilise réciproquement la relation de Hom et une cinétique de 1^{er} ordre. Pour représenter le niveau de mélange macroscopique, elle se base sur le modèle PFD. Enfin, la méthode utilise le modèle SFA pour décrire le niveau de mélange microscopique et calculer l'inactivation. Des exemples de mise en application en usine de la méthode IDDF sont donnés par Carlson et al. [28].

Un des inconvénients majeurs de la méthode IDDF est sa complexité. D'une part, du fait de l'utilisation du modèle de Hom, elle nécessite la détermination expérimentale de plusieurs paramètres pour s'appliquer convenablement aux conditions locales (mesure de k_L , n et m pour diverses conditions). D'autre part, en utilisant le modèle SFA, elle requiert la mise en place d'un calcul intégral numérique potentiellement demandant du point de vue des ressources informatiques. L'autre inconvénient concerne l'hypothèse sous-jacente liée à l'utilisation du modèle SFA, soit que le fluide est complètement ségrégué. Comme décrit par Nauman et Buffham [15], cette hypothèse semble valide pour des fluides très visqueux. Or l'eau ne rentre évidemment pas dans cette catégorie. De plus, comme mentionné précédemment, pour des réactions d'ordre supérieur à 1 (comme la réaction de désinfection) le modèle SFA donne la limite supérieure de l'inactivation possible. De ce fait, la méthode IDDF risque de conduire à des surestimations de l'inactivation. Haas et al. [7] ont comparé les prédictions de cette méthode avec

des mesures d'inactivation réalisées en pilote et les résultats sont loin d'être convaincants. Malgré sa complexité, la méthode IDDF échouait à décrire convenablement les résultats expérimentaux.

1.2.2.2 Modèle ADR

Le modèle ADR (pour « Axial Dispersion Reactor ») développé par Kim et al. en 2002 [9] découle du modèle PFD présenté plus haut. Il intègre une décroissance du désinfectant de 1^{er} ordre et utilise la relation de Chick-Watson. De ce point de vue, il peut apparaître plus simple que la méthode IDDF présentée juste avant. Cependant, le calcul de l'inactivation requiert la résolution de plusieurs équations différentielles, rendant le modèle lourd et fastidieux à mettre en place. Pour faciliter cela, Kim et al. [29] ont développé un logiciel intégrant ce modèle. Néanmoins, l'utilisation de ce logiciel requiert la détermination de nombreux paramètres, dont certains difficiles à mesurer (telle que la taille moyenne des bulles dans le contacteur). Kim et al. [10] puis Tang et al. [30] ont comparé les prédictions de ce modèle à des mesures d'inactivation de *Cryptosporidium*. Les résultats simulés étaient dans le même ordre de grandeur que ceux mesurés. Toutefois, la gamme d'inactivation possible de *Cryptosporidium* étant relativement restreinte (1 à 2 log d'inactivation maximum), il est difficile de conclure quant à la réelle validité du modèle et son applicabilité pour d'autres microorganismes plus sensibles.

1.2.2.3 CFD

La mécanique des fluides numérique, plus connue sous le nom de CFD (« Computational Fluid Dynamics »), a été proposée par plusieurs auteurs [31-33] pour calculer les performances de désinfection dans les contacteurs d'eau potable. En effet, celle-ci parvient à simuler très précisément les phénomènes hydrauliques et elle permet donc d'améliorer la connaissance du comportement hydraulique du réacteur quand les autres modèles fonctionnent davantage comme une « boîte noire » où le détail de l'hydrodynamique du réacteur n'est pas révélé. La CFD requiert toutefois des capacités de calcul très importantes et elle nécessite un expert dans le domaine pour être mise en place. De plus, elle est très sensible aux modèles internes choisis, à la définition des conditions limites et à la précision du maillage. Bien que très puissante, cette méthode est donc difficile à mettre en œuvre et souvent trop coûteuse pour être proposée à des municipalités. De plus, les résultats obtenus concernant l'hydraulique ne sont pas toujours validés par les données mesurées [31, 34-36].

Greene et al. [31] ont comparé les prédictions faites par CFD aux inactivations mesurées par Haas et al. [7] (et utilisées pour valider la méthode IDDF). La CFD a prédit des inactivations plus proches de celles mesurées que la méthode IDDF sans parvenir pour autant à parfaitement représenter les données expérimentales.

A l'heure actuelle, aucune des méthodes de calcul des performances de désinfection disponibles n'allient à la fois simplicité et réalisme. Les méthodes réglementaires, relativement faciles à utiliser, reposent sur des hypothèses contestables et sont contredites par les résultats expérimentaux et simulés. Les méthodes alternatives, sont quant à elles trop complexes pour être utilisées à large échelle et leur efficacité reste toujours à démontrer. En plus de la désinfection, l'enlèvement des contaminants chimiques est devenu l'un des principaux objectifs des stations de traitement d'eau potable. La partie suivante va aborder ce sujet et présenter les principaux modèles utilisés pour déterminer le taux d'enlèvement de ces contaminants.

1.3 Enlèvement des contaminants

La liste des micro-contaminants sur lesquels les désinfectants agissent est longue : pesticides, métaux, molécules responsables des goûts et odeurs, produits pharmaceutiques, toxines algales, etc. Les désinfectants ne sont pas tous aussi efficaces les uns que les autres et l'ozone est sans conteste le plus employé pour l'enlèvement de ces contaminants. Comme pour le calcul des performances d'inactivation, les performances d'enlèvement des contaminants sont influencées par la cinétique de réaction avec les composés, la cinétique de décroissance du désinfectant et les phénomènes hydrauliques au sein du réacteur. Il suffit donc de remplacer la cinétique d'inactivation par celle de réaction du désinfectant avec le contaminant pour déterminer son enlèvement.

1.3.1 Cinétique de 2^e ordre

L'oxydation des contaminants par les désinfectants obéit généralement à une cinétique de 2^e ordre de la forme :

$$\frac{dP}{dt} = -k_P \cdot C \cdot P \quad \text{Équation 2.18}$$

où P est la concentration du micropolluant, k_P la constante cinétique de réaction du désinfectant avec le micropolluant, et C la concentration du désinfectant. Cette relation s'applique par

exemple à l'oxydation de l'ammoniaque par le chlore ou l'ozone, ou encore à l'enlèvement des métaux par l'ozone.

Si ce n'est le remplacement du contaminant microbiologique (I) par celui chimique (P), cette relation est en tout point identique à celle de Chick-Watson. Pour des cinétiques d'enlèvement de micropolluants de 2^e ordre, un modèle de calcul des performances de désinfection reposant sur la relation de Chick-Watson pourrait donc également servir à calculer l'enlèvement des contaminants chimiques.

Cependant pour l'ozone, les cinétiques de réaction sont bien souvent plus complexes que cela du fait des différents mécanismes impliqués.

1.3.2 Cinétiques de l'ozone

Les mécanismes et cinétiques de l'ozone ont été largement étudiés dans la littérature. L'objectif de cette partie n'est pas de revenir en détail sur l'ensemble de ces mécanismes et les cinétiques associées mais de présenter succinctement la cinétique générale de réaction de l'ozone avec les contaminants chimiques. Ceux souhaitant obtenir plus d'informations pourront se référer au mémoire de Simon Vincent [37].

L'action de l'ozone sur les contaminants s'effectue au-travers de deux mécanismes : l'action moléculaire, qui implique la molécule d'ozone à proprement dite, et l'action radicalaire, réalisée par les radicaux hydroxyles (OH^\cdot) issus de la décomposition de l'ozone. Ces derniers sont extrêmement réactifs mais généralement présents en faibles quantités (sauf dans le cas de l'oxydation avancée). De son côté, l'ozone moléculaire présente souvent une efficacité plus faible sur les contaminants chimiques mais sa concentration est beaucoup plus élevée. Pour calculer convenablement l'enlèvement des micropolluants, il est donc nécessaire de prendre en compte l'action de l'ozone au travers de ces deux mécanismes. La cinétique d'oxydation des micropolluants par l'ozone est la suivante :

$$\frac{dP}{dt} = -k_{O_3} \cdot O_3 \cdot P - k_{OH^\cdot} \cdot OH^\cdot \cdot P \quad \text{Équation 2.19}$$

où k_{O_3} et k_{OH^\cdot} représentent réciproquement la constante cinétique de réaction de l'ozone et des radicaux hydroxyles avec le polluant et, O_3 et OH^\cdot la concentration d'ozone et de radicaux hydroxyles. Telle quelle, l'équation 2.19 n'est pas très commode à utiliser, en particulier car la concentration des radicaux hydroxyles est difficilement mesurable directement. Elovitz et von

Gunten [38] ont contourné ce problème en utilisant un composé traceur, le pCBA (pour « p-chlorobenzoic acid »), qui est très peu réactif avec l’ozone moléculaire mais réagit avec les radicaux hydroxyyles tel que l’équation 2.19 peut être réduite à :

$$\frac{dpCBA}{dt} = -k_{OH^{\cdot}/pCBA} \cdot OH^{\cdot} \cdot pCBA \quad \text{Équation 2.20}$$

où $pCBA$ est la concentration du composé traceur. En appliquant cette équation à un réacteur en cuvette et en intégrant, on obtient :

$$\ln\left(\frac{pCBA}{pCBA_0}\right) = -k_{OH^{\cdot}/pCBA} \cdot \int_0^t OH^{\cdot} dt \quad \text{Équation 2.21}$$

où $pCBA_0$ est la concentration initiale de pCBA. En suivant la concentration du composé traceur, il est donc possible de déterminer la concentration intégrée dans le temps de radicaux hydroxyyles, communément appelée OH^{\cdot} -ct ou CT radicalaire. En plus de cela, Elovitz et von Gunten [38] ont introduit le concept de R_{CT} , soit de ratio entre le CT radicalaire et le CT moléculaire (O_3 -ct) :

$$R_{CT} = \frac{\int OH^{\cdot} dt}{\int O_3 dt} \quad \text{Équation 2.22}$$

En couplant les équations 2.21 et 2.22, il est possible de déterminer la valeur du R_{CT} en mesurant uniquement les concentrations de pCBA et d’ozone moléculaire :

$$R_{CT} = \frac{\ln\left(\frac{pCBA}{pCBA_0}\right)}{-k_{OH^{\cdot}/pCBA} \cdot \int_0^t O_3 dt} \quad \text{Équation 2.23}$$

Elovitz et von Gunten [38] ont montré qu’une fois la décroissance de 2^e ordre de l’ozone passée (soit très rapidement), la valeur du R_{CT} restait parfaitement constante et indépendante du temps de réaction, et qu’en conséquence le R_{CT} pouvait être vu dans ce cas là directement comme le rapport entre la concentration de radicaux hydroxyyles et la concentration d’ozone :

$$R_{CT} = \frac{OH^{\cdot}}{O_3} \quad \text{Équation 2.24}$$

En remplaçant dans l’équation 2.19, cela conduit à :

$$\frac{dP}{dt} = -(k_{O_3} + k_{OH^{\cdot}} \cdot R_{CT}) \cdot O_3 \cdot P \quad \text{Équation 2.25}$$

De cette manière, l’équation 2.19 a donc été ramenée à une réaction de 2^e ordre, facilement utilisable dans un modèle de calcul des performances basé sur la relation de Chick-Watson. Il faut cependant connaître la valeur du R_{CT} , ce qui peut être déterminé au laboratoire.

Les constantes cinétiques de réaction de l’ozone moléculaire et des radicaux hydroxyles sont disponibles dans la littérature pour un très grand nombre de micropolluants. Simon Vincent [37] a rassemblé les données disponibles concernant les principaux contaminants émergents retrouvés dans les eaux de surface au Québec. D’autres articles [39-41] présentent les constantes cinétiques d’autres micropolluants potentiels. Par ailleurs, Vincent et al. [42] ont établi à partir d’essais réalisés sur plusieurs eaux québécoises un modèle permettant de calculer la valeur du R_{CT} en fonction de différents paramètres mesurables en continu. Pourtant à l’heure actuelle, les performances des stations concernant l’enlèvement des contaminants chimiques ne sont pas évaluées en l’absence d’une méthode appropriée pour le faire.

1.4 Objectifs et hypothèses de recherche

Découlant de la revue de littérature réalisée, les objectifs et hypothèses de recherche ont été formulés, et ceci afin de répondre à la question de recherche suivante :

Comment évaluer précisément et simplement les performances liées aux multiples objectifs des installations de traitement d’eau potable en prenant à la fois en compte les phénomènes hydrauliques et cinétiques ?

1.4.1 Objectifs

L’objectif général de ce travail est donc de concevoir une méthode de calcul permettant d’évaluer les performances de désinfection et d’enlèvement des contaminants chimiques, dans une installation de traitement d’eau potable.

Les objectifs spécifiques liés à cet objectif général sont :

- Développer une méthode de calcul des performances de désinfection fiable s’appuyant sur une meilleure prise en compte de l’hydraulique et de la cinétique des réactions ;
- Développer une méthode de calcul des performances de désinfection simple qui soit facilement applicable en usine ;
- Proposer une méthode qui permette de calculer l’enlèvement de différents types de contaminants (responsables des goûts et odeurs, pesticides, pharmaceutiques, toxines algales, etc.) ;

- Proposer des stratégies d'opération pour maintenir la performance de désinfection en cas d'entretien ou de bris de procédés, conformément aux exigences du RQEP [43] à propos du logiciel de calcul en continu.

1.4.2 Hypothèses de recherche

Deux sortes d'hypothèses ont été posées : des hypothèses simplificatrices permettant l'élaboration d'une méthode de calcul et des hypothèses originales mettant en évidence la contribution de cette méthode. Les hypothèses simplificatrices sont les suivantes :

- Les modèles prédictifs développés par l'US EPA ne sont pas toujours valides en raison des hypothèses simplificatrices ayant mené à leur développement.
- La cinétique de désinfection peut être décrite par une loi de Chick-Watson.
- La décomposition du chlore peut être décrite par une cinétique d'ordre un.
- Le comportement macroscopique peut être décrit par les résultats d'essais de traçage.
- Le degré de mélange microscopique d'un réacteur doit être pris en compte pour prédire adéquatement sa performance.

Les hypothèses originales de contribution sont présentées ci-dessous :

- Un modèle incorporant la cinétique d'inactivation, la décroissance du chlore et le comportement hydraulique d'un réacteur permet de prédire l'inactivation de *E. coli* avec une précision de +/- 1 log.
- Le modèle précédent permet de déterminer l'inactivation en continu, soit de prédire l'inactivation d'au-moins trois types de microorganismes à chaque minute.
- Les stratégies d'opération proposées permettent de maintenir la performance de désinfection en cas de bris ou de maintenance d'un procédé.

Le chapitre suivant va décrire la démarche utilisée dans ce travail de recherche pour répondre aux différents objectifs fixés.

CHAPITRE 2 DÉMARCHE DU TRAVAIL DE RECHERCHE

Ce chapitre va présenter succinctement la démarche du travail de recherche et l'organisation générale du mémoire en présentant les différentes étapes du travail réalisées et les résultats générés.

2.1 Étude des modèles et analyse de l'influence des paramètres de calcul

A l'issue de la revue de littérature, les différents modèles existants ont été étudiés en profondeur et comparés (sauf pour le modèle ADR et la CFD qui étaient trop complexes et ne répondaient donc pas au 2^e objectif). Les premiers modèles analysés ont été ceux permettant de décrire les résultats d'essais de traçage.

2.1.1 Modèles décrivant le niveau de mélange macroscopique

Les modèles PFD et N-CSTR ont été appliqués à plusieurs essais de traçage issus de différents contacteurs pour évaluer leurs performances à décrire le niveau de mélange macroscopique de contacteurs réels. L'impact du modèle hydraulique choisi sur l'inactivation calculée a aussi été étudié et l'ensemble de ces résultats est présenté dans l'article.

A partir d'essais de traçage réalisés sur un même contacteur mais à différents débits, l'impact du débit sur les performances hydrauliques du contacteur a été évalué. Ces données sont présentées dans la partie « Résultats complémentaires ».

2.1.2 Modèles définissant le niveau de mélange microscopique

A partir des ajustements des essais de traçage effectués avec les modèles PFD et N-CSTR, les deux modèles incarnant les deux extrêmes du mélange microscopique (soit les modèles SFA et MMA) ont été mis en place dans des tableurs pour comparer leurs résultats et analyser leur comportement. Tout d'abord, la sensibilité de ces modèles aux différents paramètres de calcul (comme le pas de temps par exemple) a été analysée. Cette analyse est présentée dans les « Résultats complémentaires ». L'autre objectif de mettre en œuvre ces deux modèles était d'évaluer les capacités informatiques requises.

Une fois mis de côté le biais éventuel dû aux méthodes de calcul numérique et assurée la validité des résultats simulés, les prédictions des modèles SFA et MMA ont été comparées à celles des

modèles réglementaires pour différentes conditions de décroissance du désinfectant et d'inactivation. Cette comparaison est présentée dans l'article.

Afin d'évaluer parmi les deux modèles de mélange microscopique lequel serait le plus proche des conditions réelles dans les réacteurs, le Nombre de Ségrégation a été calculé pour différents désinfectants à plusieurs températures (ces résultats sont présentés dans la partie « Résultats complémentaires »). Ceci a conduit à une analyse plus approfondie des hypothèses sous-jacentes à ces deux modèles et mis en évidence leurs limites.

2.1.3 Amélioration d'un ancien modèle

Les modèles MMA et SFA s'avérant trop complexes et trop sensibles pour être facilement applicables en usine, un modèle dérivé du modèle N-CSTR et proposé par Lawler et Singer en 1993 [23] a été étudié. Le modèle a été amélioré pour permettre un nombre de CSTR en série fractionnel et ainsi permettre une meilleure description du mélange macroscopique. Ce modèle, nommé modèle Partiellement Ségrégué (du fait de son comportement), est décrit dans l'article. Ses prédictions ont été comparées à celle des autres modèles et sont présentées dans l'article.

2.2 Validation des modèles avec des résultats expérimentaux

Afin de confirmer les comportements théoriques des modèles observés par simulation, des essais d'inactivation en pilote ont été menés.

2.2.1 Réalisation des essais

Un pilote a été construit afin de mener des essais d'inactivation. Des essais en cuvette ont été réalisés en parallèle pour déterminer la valeur des différents paramètres (k_L et k_D). Un essai de traçage du pilote a également été réalisé pour mesurer le niveau de mélange macroscopique. La méthodologie ainsi que les résultats de ces essais sont présentés dans l'article.

2.2.2 Validation des modèles

Les modèles utilisés pour décrire les cinétiques d'inactivation et de décroissance du désinfectant, le niveau de mélange macroscopique, et finalement l'inactivation obtenue à la sortie du pilote ont été confrontés aux résultats expérimentaux. Ces données sont présentées dans l'article.

2.3 Développement d'une nouvelle méthode de calcul des performances

A partir du modèle ayant donné les meilleurs résultats (d'un point de vue théorique et expérimental), une nouvelle méthode de calcul des performances a été développée et mise en application.

2.3.1 Élaboration de la méthode

Cette méthode présente les différentes étapes pour la mise en place du modèle en fonction des données disponibles. Elle est détaillée à la fin de l'article.

2.3.2 Exemple de mise en place en usine

Pour illustrer les capacités requises et les paramètres à mesurer pour mettre en place le modèle, un exemple concret d'installation du modèle au-travers d'un tableur a été réalisé et est présenté dans la partie « Résultats complémentaires ».

2.3.3 Élaboration de stratégies de traitement

Enfin, des stratégies d'opération permettant de maintenir la performance de désinfection en cas d'entretien ou de bris d'un ou plusieurs des procédés impliqués dans la désinfection ont été élaborées et sont disponibles dans la partie « Résultats complémentaires ».

CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE

Cette section présente le matériel et les méthodes utilisées dans les différentes tâches accomplies pendant le travail de recherche.

3.1 Essais de traçage réalisés en usine

Les résultats d'essais de traçage concernant des contacteurs d'usines de traitement d'eau potable proviennent d'études antérieures [44, 45]. Tous les essais ont été réalisés d'après les recommandations de Teefy [12]. Les informations essentielles concernant leur réalisation sont présentées plus bas.

3.1.1 Essais de traçage réalisés à Chomedey et Des Baillets

Les essais de traçage réalisés à Chomedey et Des Baillets ont été effectués sur des bassins d'ozonation. A Chomedey, le contacteur d'ozone est composé de trois trains identiques en parallèle et les résultats montrés correspondent donc à ceux d'un seul des trois bassins. De même pour Des Baillets où l'ozonation s'effectue dans six trains identiques en parallèle.

Les ions fluorures ont été utilisés comme traceur sous la forme d'acide hexafluorosilicique injecté à une concentration moyenne de 2,0 mg/L à l'usine Des Baillets et 1,3 mg/L à l'usine Chomedey. La concentration d'ions fluorures à la sortie des bassins a été mesurée sur place à l'aide d'un fluorimètre portable Hach.

Les essais de traçage de type échelon ont été réalisés à trois débits différents dans chaque usine. A Chomedey, ils ont été effectués à des débits de fonctionnement de l'usine de 90 000 m³/d, 110 000 m³/d et 135 000 m³/d. À Des Baillets, les débits étaient de 760 000 m³/d, 1 125 000 m³/d et 1 680 000 m³/d. Ces débits sont ceux entrant dans le procédé d'ozonation au complet. Pour connaître les débits dans le bassin tracé, il faut donc diviser les débits précédents par 3 et 6 respectivement pour les usines de Chomedey et Des Baillets.

Plus d'informations concernant ces essais de traçage sont fournies dans le mémoire de Géraldine El Baz [44].

3.1.2 Essais de traçage réalisés à Repentigny

Les essais de traçage ont été réalisés sur le procédé de post-ozonation de l'usine de Repentigny, qui est composé de deux bassins en parallèle presque identiques [45]. Des essais de traçage ont été effectués sur les deux bassins mais les résultats n'ont pas montré de différences significatives entre les courbes de traçage des deux bassins. Par conséquent, seule la courbe de traçage d'un bassin est présentée.

L'acide hexafluorosilicique a été utilisé comme traceur et injecté à une concentration d'environ 1,2 mg/L pendant une période équivalente à trois TRH.

L'essai de traçage de type échelon a été réalisé à un débit de fonctionnement de l'usine de 48 000 m³/d, soit environ 24 000 m³/d par bassin.

3.2 Simulations

Cette partie présente le matériel et les méthodes utilisés pour mettre en place, analyser et comparer les différents modèles étudiés.

3.2.1 Matériel

Les modèles ont été mis en place dans des feuilles de tableur Excel 2007. Les modules complémentaires « Solveur » et « Développeur » ont été installés et utilisés lors des différents ajustements ou simulations réalisées.

Les calculs ont été effectués sur un ordinateur portable Acer, de modèle Aspire 5742, utilisant un processeur Intel® Core™ i5 de 2.53 GHz et une mémoire RAM de 4 Go.

3.2.2 Méthodes

3.2.2.1 Ajustement des modèles PFD et N-CSTR aux essais de traçage

La méthode utilisée pour ajuster les modèles de mélange macroscopique aux résultats d'essais de traçage est celle décrite dans l'article, soit la minimisation de la somme des erreurs au carré (ESS, pour « Error Sum of Squares ») entre les points expérimentaux et ceux simulés.

Concrètement, pour chaque ajustement d'essai de traçage, le TRH du modèle est d'abord posé égal au TRH théorique estimé lors de l'essai et le paramètre hydraulique est grossièrement ajusté

par essai-erreur pour obtenir une bonne concordance graphique. Ces deux paramètres sont ensuite automatiquement ajustés en utilisant le module « Solveur » d'Excel pour minimiser l'ESS.

3.2.2.2 Détermination des paramètres de calcul nécessaires pour l'utilisation du modèle SFA

La détermination des paramètres de calcul du modèle SFA à utiliser, tels que le pas de temps, la période d'intégration ou la méthode optimale d'intégration numérique, a été faite de différentes manières.

3.2.2.2.1 Pas de temps nécessaire

Pour déterminer le pas de temps minimum à utiliser, l'inactivation est d'abord calculée avec le pas de temps le plus fin possible, soit 0.001 min (au-delà de cela, lorsque les TRH sont importants, le tableur Excel devient trop lourd pour être exécuté). L'inactivation est ensuite calculée en partant d'un pas de temps égal au TRH/10 et comparée à celle obtenue avec le pas de temps fixé à 0.001 min. Si l'écart est supérieur à 0.05 log, le pas de temps est divisé d'un facteur 1.25, et ainsi de suite jusqu'à ce que la différence entre l'inactivation avec le pas de temps de 0.001 min et celle calculée soit inférieure ou égale à 0.05 log. Le pas de temps ainsi obtenu correspond donc au pas de temps minimum pour que le biais dû au calcul numérique ne dépasse pas 0.05 log. Le calcul du pas de temps minimum nécessaire a été réalisé pour 3 TRH (1, 10 et 100 min), 3 niveaux de performances hydrauliques ($N = 2, 4$ et 40 CSTR en série), 5 valeurs de k_D (de 0.001 à 10 min^{-1} en augmentant d'un ordre de grandeur à chaque fois) et 11 valeurs de k_L (de 0.001 à 100 L/mg.min en augmentant d'un demi ordre de grandeur). La valeur de C_0 a été fixée à 1 et non modifiée car seul le produit $k_L \cdot C_0$ intervient dans le calcul de l'inactivation (comme il apparaît dans les formules des différents modèles). Ces valeurs de paramètres ont été choisies pour représenter tout l'éventail possible de celles mesurées en conditions réelles.

3.2.2.2.2 Période d'intégration nécessaire

La période d'intégration nécessaire, soit la partie de la DTS à considérer dans le calcul, a été déterminée en comparant l'inactivation calculée sur une période de 5 TRH (période maximum recommandée) aux inactivations obtenues après chaque intervalle de temps depuis le temps zéro. Pour que le pas de temps n'influence pas les résultats, celui-ci a été fixé à 0.001 min. La période d'intégration nécessaire est celle pour laquelle l'inactivation obtenue est à 0.05 log près égale à l'inactivation obtenue avec la période d'intégration de 5 TRH. Cette période d'intégration

minimale nécessaire a été calculée pour les mêmes conditions que celles utilisées pour déterminer le pas de temps nécessaire (TRH de 1, 10 et 100 min, etc.).

3.2.2.2.3 Méthode optimale d'intégration numérique

Le calcul du pas de temps nécessaire a été effectué avec deux méthodes d'intégration numérique afin de voir laquelle convergerait le plus rapidement vers l'inactivation et nécessitait le pas de temps le moins fin. De cette manière a été déterminée la méthode d'intégration optimale qui nécessitait le moins de capacité.

3.2.2.3 Simulation et comparaison des prédictions des différents modèles

Les inactivations prédites par les différents modèles de calcul de l'inactivation ont été calculées pour les mêmes conditions que celles utilisées pour la détermination du pas de temps nécessaire en ajoutant une valeur supplémentaire de TRH et de CSTR en série (respectivement 1000 min et N=8).

3.3 Essais d'inactivation en pilote

Cette partie va présenter le matériel et la méthodologie utilisés pour réaliser les essais de désinfection et interpréter les résultats obtenus.

3.3.1 Réalisation des essais

3.3.1.1 Matériel

La liste du matériel comprend les équipements utilisés (hors verrerie habituelle) et les produits chimiques employés.

3.3.1.1.1 Équipements

Les équipements utilisés pour la réalisation des essais de désinfection sont les suivants :

- 1 contacteur en PVC transparent de 10 L comprenant 3 chicanes ;
- 1 réservoir d'eau de 50 L ;
- 3 pompes Masterflex L/S Drive RK-07523-60 ;
- 2 têtes de pompes et 2 tubes de taille L/S 16 ;

- 1 tête de pompe et 1 tube de taille L/S 17 ;
- 1 mélangeur statique ;
- 1 vanne à vis ;
- 1 vanne trois voies ;
- 1 spectrophotomètre Cary 100 (N° de série : EL05083017).

3.3.1.1.2 *Produits chimiques*

Les produits chimiques utilisés spécifiquement pour les essais (hors méthodes analytiques) sont les suivants :

- Solution de rhodamine concentrée (KEYACID RHODAMINE WT LIQUID I.D. 70301027) ;
- Solution mère d'hypochlorite de sodium (NaOCl) à 9000 mgCl_2/L ;
- Solution de thiosulfate de sodium ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$) à 10% M/V ;
- Acides humiques solides (Aldrich, CAS : 1415-93-6) ;
- Acide borique solide (H_3BO_3) ;
- Hydroxyde de sodium solide (NaOH).

3.3.1.2 Méthodes

3.3.1.2.1 *Méthode d'analyse du chlore résiduel*

La méthode d'analyse du chlore résiduel utilisée est la méthode colorimétrique à la DPD 4500-Cl G décrite dans le « Standard Methods » [46].

3.3.1.2.2 *Méthode de production de la solution d'E. coli*

La méthode employée pour produire la solution mère d'*E. coli* est celle décrite dans le mémoire de Lina Boulos [47].

3.3.1.2.3 *Méthode d'analyse des échantillons d'E. coli*

Les échantillons d'*E. coli* ont été prélevés dans des tubes stériles contenant du thiosulfate de sodium à raison de 250 μL par 250 mL prélevés. Le thiosulfate de sodium sert à consommer le chlore résiduel restant et à éviter que la désinfection ne se poursuive. Les échantillons d'*E. coli*

ont ensuite été analysés par dénombrement direct après avoir été filtrés et incubés pendant 24 heures à 37°C sur du milieu de culture MI (Difco™ MI Agar réf. 214 882).

3.3.1.2.4 Production de tampon borate à pH 9

Le tampon borate à pH 9 d'une force ionique $\mu = 5.10^{-3}$ mol/L a été obtenu de la manière suivante :

- 41.32 g d'acide borique ont été ajoutés progressivement dans 1L d'eau Milli-Q et mélangés pendant 1 heure afin d'obtenir une dissolution complète ;
- 10.03 g d'hydroxyde de sodium ont été ajoutés progressivement dans 100 mL d'eau Milli-Q et mélangés jusqu'à dissolution complète (moins de 5 min) ;
- en fonction du volume de tampon borate souhaité, un certain volume de la solution d'acide borique préparée a été ajouté et mélangé afin d'obtenir une concentration finale en H_3BO_3 de 1.033 g/L ;
- de même, un certain volume de la solution d'hydroxyde de sodium préparée a été ajouté et mélangé afin d'obtenir une concentration finale en NaOH de 0.267 g/L et un tampon borate à pH 9.

3.3.2 Analyse des résultats

La partie qui suit présente le matériel et les méthodes utilisés pour analyser les résultats obtenus lors des essais en cuvée et en pilote.

3.3.2.1 Matériel

Les résultats ont été analysés à l'aide du logiciel Statistica version 10 de StatSoft, inc.

Le module complémentaire « Utilitaire d'analyse » d'Excel 2007 a également été installé et utilisé pour générer aléatoirement des données.

3.3.2.2 Méthodes

3.3.2.2.1 Détermination des paramètres cinétiques

Les paramètres cinétiques (k_L , C_0 et k_D) ont été déterminés à partir des résultats des essais en cuvée où la concentration résiduelle de chlore et la concentration en *E. coli* ont été mesurées à

intervalles rapprochés (aux 20 secondes environ). A l'aide du logiciel Statistica, une régression non linéaire a été effectuée sur les données expérimentales en utilisant les modèles de Chick-Watson et de décroissance du 1^{er} ordre pour un réacteur en cuvette. Les valeurs estimées et les erreurs pour chaque paramètre cinétique ont ainsi été obtenues, de même que le coefficient de détermination (R^2) des modèles.

3.3.2.2.2 Production de 200 valeurs aléatoires pour chaque paramètre cinétique (« bootstrap »)

Afin de prendre en compte l'erreur reliée aux mesures expérimentales dans les résultats de simulation des modèles, une analyse de type « bootstrap » a été menée. Pour chaque paramètre, 200 valeurs ont été aléatoirement générées en considérant une distribution normale des valeurs possibles. La moyenne et l'écart-type de cette distribution sont respectivement la valeur estimée et l'erreur obtenues pour chaque paramètre. L'inactivation a ensuite été calculée 200 fois pour chaque modèle en utilisant ces données.

CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : DEVELOPMENT AND COMPARISON OF A SIMPLE AND RELIABLE METHOD TO CALCULATE DISINFECTION PERFORMANCE

VALENTIN PFEIFFER^{A, B} AND BENOIT BARBEAU^{A, C}

^a Industrial NSERC Chair on Drinking Water, Civil, Geological and Mining Engineering Dept., Polytechnique Montreal, CP 6079, Succ. Centre-Ville, Montreal, Quebec, Canada H3C 3A7

^b (Corresponding author) Phone: +1 438 882 0889. E-mail: valentin.pfeiffer@polymtl.ca

^c Phone: +1 514 340 4711 ext. 2988. Fax: +1 514 340 5918. E-mail: benoit.barbeau@polymtl.ca

Abstract

In spite of its shortcomings, the T10 method introduced by US EPA in 1989 is still now the most used in North America to calculate the disinfection performance. Other methods (like the IDDF) have been put forward to replace it and more recently US EPA suggested the Extended T10 and Extended CSTR methods to improve the inactivation calculations within ozone contactors. In order to develop a method which fully considers the hydraulic behaviour of the contactor, two models (the Plug Flow with Dispersion and the N-CSTR) were successfully fitted to five tracer tests results derived from four different Water Treatment Plants and a pilot-scale contactor. An improved model derived from the N-CSTR model was defined as the Partially Segregated model (Pseg). The predictions from all these methods were compared in conditions of poor and good hydraulic performance, for low and high disinfectant decay, and for different levels of inactivation. They were also compared to experimental results from a chlorine pilot-scale contactor used for *Escherichia coli* inactivation. The T10 and Extended T10 methods led to huge over and underestimations. The Segregated Flow Analysis (used in the IDDF) also considerably overestimated inactivation for high disinfectant decay. Only the Extended CSTR and Pseg models gave realistic and conservative predictions in all cases. Finally, a new simple and reliable method based on the Pseg model was suggested for the calculation of disinfection performance.

Keywords

Disinfection calculation method

Escherichia coli inactivation

Chlorine contactor

T10 model

CSTR

Segregated Flow Analysis

4.1 Introduction

Over the last two decades, many North American water treatment plants (WTP) were forced to implement new processes in order to meet the increasingly stringent standards related to drinking water primary disinfection. Meanwhile, the regulatory method used to evaluate disinfection performance, the CT₁₀, has remained more or less the same although it has often been criticized for its shortcomings (Lawler and Singer, 1993; Smeets et al., 2006). Considering the importance of disinfection processes to reduce the microbial risk and the increased popularity of quantitative microbial risk analysis (QMRA) to achieve this goal, improved methods to predict disinfection performance are clearly needed in the water industry.

Disinfection performance depends on three main factors: (i) the inactivation kinetics, (ii) the disinfectant decay in water and (iii) the reactor's hydrodynamics. All these factors are strongly dependent on environmental conditions like the water characteristics (temperature, pH, organic matter content, etc.) or the microorganism state (fixed, suspended, aggregated, etc.). Several well-known models have been used to describe the inactivation kinetics taking place in a batch reactor or a plug-flow system (Chick-Watson, Hom, Rational, etc.). The Hom and Rational models are useful when deviations from linearity are observed. The latter can be caused by many factors: heterogeneity in resistance, agglomerates of microorganisms, turbidity. Although less complex, the Chick-Watson model is often sufficient to describe experimental data and was therefore adopted by the US EPA in 1989. The disinfectant decay is most often described by a first-order reaction with an immediate demand (due to very fast reactions of the disinfectant with some compounds). The Chick-Watson model can be easily modified to account for that but does not consider the reactor hydrodynamics. Consequently, the US EPA developed the concept of CT₁₀ with the goal of including a simplified technique to assess the impact of reactor hydraulics. Yet, this method is known to underestimate (or even overestimate) the actual performance of disinfection processes. In its recent guidance developed for the LT2SWTR (2010), the US EPA suggested two alternative methodologies for calculating disinfection performance in full-scale ozone contactors as the limitations of the CT₁₀ (or T10 method) are especially apparent for this

process. The first alternative methodology, termed the Extended T10 method, is also based on the product $C \times T_{10}$ but uses an interpolated disinfectant concentration to calculate the inactivation in each chamber. The second method, termed the Extended CSTR method, assumes that each contactor chamber exhibits an hydraulic behaviour equivalent to a single Continuous Stirred-Tank Reactor (CSTR). Several authors (Kim et al., 2007; Kim et al., 2010) have shown that this assumption is questionable, even for contactors with conventional configurations.

Many reactor models (Fogler, 2006; Haas et al., 1997; Levenspiel, 1999; Martin-Dominguez et al., 2005) have been proposed to describe the actual hydraulic behaviour of disinfection basins. Their goal is to describe intermediates between the two ideal and extreme models of reactor represented by the Plug Flow Reactor (PFR) and the Continuous-Stirred Tank Reactor (CSTR). The most common models are the Plug Flow with Dispersion model (PFD), the Continuous-Stirred Tank Reactors in series model (N-CSTR ; N referring to the number of CSTRs in series) and the Compartment model (Levenspiel, 1999). This last one requires a more intimate knowledge of the hydraulic phenomena occurring inside the reactor and is fitted using three or more parameters as opposed to only two for the PFD and N-CSTR models. The PFD and N-CSTR model parameters are the Hydraulic Retention Time (HRT) and the number of CSTRs (or the Peclet number for the PFD). Although the HRT can be obtained by dividing the volume of reactor by the flow, it is often difficult to accurately calculate the HRT in real municipal contactors (due to changing water levels and flows and complex configurations). It is therefore simpler to leave HRT as a model parameter. Haas et al. (1997) has shown that these model parameters can be estimated reliably by nonlinear regression techniques.

The PFD and N-CSTR models aim to describe the macroscopic behaviour of the flow (i.e. the presence of short-circuiting or stagnant zones) but do not reflect the microscopic state of mixing (i.e. the level of mixing between molecules of different ages; based on the time spent in the reactor). Two extreme models exist to describe the degree of microscopic mixing: the fully segregated model and the maximum mixedness model (Fogler, 2006). The segregation model (also called Segregated Flow Analysis, SFA) considers that the fluid parcels are fully segregated. Each element (composed of several molecules) does not interact with the others until the exit of the reactor. On the opposite, the maximum mixedness model (or Micro-Mixing Analysis, MMA) assumes that each element is immediately mixed with the nearby other elements while entering in the reactor. The SFA assumes that all the elements enter the reactor at the same location but they

exit at variable residence times and only mix at the exit with fluid parcels of different ages. On the other hand, the MMA assumes that each element enters the reactor at variable physical locations and instantly mixes with the nearby elements. In both cases, the Residence-Time Distribution (RTD) is identical. Yet, the prediction of disinfection performance will be impacted by the level of micromixing. Concretely, for the SFA the microorganisms exiting the most rapidly will have been exposed to a disinfectant concentration close to the influent concentration (as they did not stay long enough inside the reactor to experience a disinfectant decay) whereas for the MMA, they will have been exposed to a disinfectant concentration close to the final one (as they were immediately mixed with the exiting flow). For first order reaction (like disinfectant decay), both models predict identical results and the degree of segregation is deemed unimportant. But for reactions whose order is superior to 1 (like microbial inactivation), the MMA will provide conservative results compared with the SFA (as shown by Craik (2005) and proven by Fogler (2006)).

As an alternative to the models described previously, several authors (Greene et al., 2006; Wols et al., 2010) have also proposed using Computational Fluid Dynamics (CFD) to accurately simulate the hydraulic behaviour of a reactor and its performance for disinfection. Although powerful, this method is difficult to implement and often too expensive to be routinely implemented in small water systems. In addition, the results are not always better than those obtained with less complex models (Ducoste et al., 2001). The CFD is nevertheless a useful tool, especially for large design projects, as it allows testing various reactor configurations. The previous models are closer to a "black box" approach but are more suitable for wide-scale application. However, literature does not currently offer definitive recommendations concerning the choice of hydraulic model to best describe the reactor hydraulic and, most importantly, the impact of this decision on predicted microbial inactivation. Though the choice of models to describe the different phenomena (hydraulic, kinetic, etc.) occurring inside a reactor has a significant impact on the predicted disinfection performance (Ducoste et al., 2001; Greene et al., 2006; Haas et al., 1997), additional research is needed in this domain. Moreover, validation of predicted reactor performance has rarely been realised. Smeets et al. (2006) compared predictions from the T10 and CSTR models to *Escherichia coli* inactivation and observed that both models led to huge overestimations. Earlier, Haas et al. (1998) used the SFA with the Hom model to predict the inactivation of three microorganisms (*E. coli*, MS2 virus and *Giardia*) using three

disinfectants (ozone, chlorine and monochloramine) in two water matrices. They compared their predictions to experimental results. Finally, Kim et al. (2002) and Tang et al. (2005) applied the Axial Dispersion Reactor (ADR) model to contactors with ozone diffusers and tested it with measured *Cryptosporidium* inactivation. None of those models perfectly fitted the experimental data and the closest ones were too sophisticated to be easily implemented at WTPs for on-line inactivation calculations.

The complexity of disinfection performance evaluation has led to extreme simplifications or the development of very sophisticated methods. Our final objective is to propose a simple and reliable method to predict the performance of reactive contactors (i.e. contactors which are only used to provide contact time with a residual disinfectant). Tracer studies originating from four full-scale plants and one lab-scale reactor were first used to compare the applicability of the N-CSTR versus PFD models. In a second step, we evaluated the performance of several alternative disinfection models (T10, Extended T10, Extended CSTR, MMA, SFA, Partially Segregated) to predict the inactivation of *E. coli* by chlorine in a lab-scale contactor.

4.2 Material and Methods

The first section will present the various disinfection models that will be compared. The second section will describe the experimental work conducted at pilot-scale on a chlorine contactor tested for *E. coli* inactivation. This data set was used to validate the predicted inactivation of the aforementioned disinfection models.

4.2.1 Description of Disinfection Models

4.2.1.1 Fundamental model components

4.2.1.1.1 Inactivation kinetics

Microbial inactivation can be described with the second order Chick-Watson kinetic model (Eq. 1):

$$\frac{dI}{dt} = -k_L \cdot C \cdot I \quad (1)$$

where I is the concentration of viable microorganisms, t the time, k_L the lethality rate constant and C the disinfectant concentration.

4.2.1.1.2 Disinfectant decay

The disinfectant decay (after the immediate demand) can be modeled as a first order kinetics with differential rate law given by Eq. 2:

$$\frac{dC}{dt} = -k_D \cdot C \quad (2)$$

where k_D is the disinfectant decay rate constant.

4.2.1.1.3 Hydraulic behaviour

The macroscopic hydraulic behaviour (called macromixing) is depicted by the Residence Time Distribution (RTD) obtained from a tracer test. Since experimental results are usually not smooth enough to be directly used in inactivation calculations, hydraulic models are frequently employed to fit tracer results and provide continuous curves. They further allow characterising the hydraulic performance with specific parameters which is useful to compare the performance at different flows or between different contactors. Finally, they can serve to model the contactor as a combination of reactors whose resultant RTD is identical to the measured one. Next are presented two models commonly used and the procedure applied to fit them with the experimental data.

4.2.1.1.3.1 The N-Continuous Stirred Tank Reactors (N-CSTR) model

The N-CSTR model (also called tanks-in-series model or gamma model) assumes that the contactor is composed of N completely stirred-tank reactors in cascade whose resultant RTD is given by:

$$E(t) = \left(\frac{t}{HRT}\right)^N \frac{N^N}{t \Gamma(N)} \exp\left(\frac{-Nt}{HRT}\right) \quad (3)$$

where HRT is the Hydraulic Retention Time, N the number of reactors in series and Γ the mathematical gamma function which extends the factorial function to fractional numbers. Nauman and Buffham (1983) showed that the classical N-CSTR model (as defined in Levenspiel (1999)) can be used with fractional values of reactors in series without disturbing the model

predictions. Having fractional N values is particularly useful when N is small as the RTD curve will considerably change from one CSTR to few CSTRs in series. Thus, it provides more flexibility for fitting experimental tracer curves. The Cumulative Residence Time Distribution (used to fit step tracer tests) can be obtained by integrating and summing the RTD.

4.2.1.1.3.2 The Plug Flow with Dispersion (PFD) model

The PFD model (also called axial dispersion model) assumes that the reactor is similar to a non-ideal pipe where some degree of longitudinal dispersion occurs. From a mathematical standpoint, several forms of the axial dispersion model are possible depending on the degree of dispersion and the boundary conditions (Levenspiel, 1999). The axial dispersion model applied in this article (referred to as the PFD model) is the approximation of the closed-closed large dispersion model proposed by Haas et al. (1997) whose cumulative RTD is given by:

$$F(t) = \Phi \left[\left(\frac{t}{HRT} - 1 \right) \sqrt{\frac{HRT}{t \nu}} \right] + \exp \left(\frac{2}{\nu} \right) \Phi \left[- \left(\frac{t}{HRT} + 1 \right) \sqrt{\frac{HRT}{t \nu}} \right] \quad (4)$$

where Φ is the cumulative function of the standard normal distribution and ν the dimensionless variance defined by:

$$\nu = \frac{2}{Pe} - \frac{2}{Pe^2} (1 - \exp(-Pe)) \quad (5)$$

where Pe is the Peclet number.

4.2.1.1.3.3 Model adjustments to experimental tracer curves

As shown by Haas et al. (1997), the estimation of RTD parameters (i.e. HRT and N or Pe) of macromixing models is more accurate and unbiased while using nonlinear regression as opposed to the method of moments. Consequently, all the experimental tracer curves presented in this work were adjusted to the step tracer tests using nonlinear regression. In practice, the fitting parameters were adjusted using Excel 2007 solver by minimizing the Error Sum of Squares (ESS) described by Eq. 6.:

$$ESS = \sum \left(\frac{A(t)}{A_0} - F(t) \right)^2 \quad (6)$$

where $A(t)$ is the measured tracer concentration at contactor exit at time t , A_0 is the step concentration at reactor entrance and $F(t)$ is the cumulative percentage of fluid that exited the contactor at time t according to the macromixing model.

To evaluate the performance of the PFD and N-CTSR models, they were both fitted to four tracer curves originating from three full-scale ozone contactors and one full-scale chlorine contactor located in Quebec (Canada). All of these tracer experiments had been conducted with a step input of fluoride according to the recommendations of Teeffy (1996).

4.2.1.2 Description of predictive inactivation models

The inactivation models studied in this article do not differ by their evaluation of inactivation kinetics or disinfectant decay. They vary by their assumptions concerning the hydraulic behaviour of the contactor.

4.2.1.2.1 RTD-based models

The following models all base their inactivation calculation on the RTD. However, they differ by their assumptions regarding micromixing.

4.2.1.2.1.1 The Segregated Flow Analysis (SFA)

The SFA assumes that the fluid is fully segregated, i.e. it is composed of many elements (of several molecules) which do not interact with each other. It represents an extreme condition where no micromixing takes place within the reactor. Consequently, the SFA supposes that each element behaves as a batch reactor whose retention time is defined according to the residence time distribution. The disinfectant concentration at the reactor exit (C_{out}), where the mixing of all elements occurs, is determined as followed:

$$C_{out} = \int_0^{\infty} C_{batch}(t) \cdot E(t) dt \quad (7)$$

where $C_{batch}(t)$ is the residual disinfectant concentration in a batch reactor after a residence time of t . In the same way, the microorganisms concentration at the reactor exit (I_{out}) will be given by:

$$I_{out} = \int_0^{\infty} I_{batch}(t) \cdot E(t) dt \quad (8)$$

where $I_{batch}(t)$ is the microorganisms concentration in a batch reactor after a residence time of t .

Using Eqs (1) and (2) while performing a mass balance over a batch reactor and accounting for disinfection decay, one can find after integration that:

$$I_{batch}(t) = I_0 \exp\left(-\frac{k_L C_0}{k_D} (1 - \exp(-k_D t))\right) \quad (9)$$

where I_0 and C_0 are respectively the initial microorganisms and disinfectant concentrations. As the SFA rests on an integral calculus, it is strongly influenced by the boundaries, the time step (Craik, 2005) and the numerical method used for integration. The SFA calculations were here performed over at least 5 HRTs, with a time step of 0.01 min or smaller and using the numerical method of integration for n+1 points where n is even, as described in Fogler (2006).

4.2.1.2.1.2 The Micro-Mixing Analysis (MMA)

As opposed to the SFA, the Micro-Mixing Analysis assumes that the fluid is fully micromixed, i.e. each element entering the reactor (which acts like a plug flow reactor) at different physical location is immediately mixed with the nearby elements. The elements enter more or less close to the exit and this distribution of inlet fluid is based according to the residence time distribution. As demonstrated by Fogler (2006), this model leads to the following differential equations:

$$\frac{dC}{d\lambda} = -k_D \cdot C + (C - C_0) \frac{E(\lambda)}{1 - F(\lambda)} \quad (10)$$

$$\frac{dI}{d\lambda} = -k_L \cdot C \cdot I + (I - I_0) \frac{E(\lambda)}{1 - F(\lambda)} \quad (11)$$

where λ is the life expectancy, i.e. the time each molecule will spend in the reactor before exiting. The solutions to these equations are obtained by backward numerical integration from large

values of λ in order to get a convergent value at $\lambda=0$ (corresponding to the reactor exit). However, the condition of convergence strongly depends (i) on the initial conditions (the value of λ from where the integration is started and the initial values of C and N), (ii) the time step and (iii) the numerical method used (Craik, 2005). For this work, calculations were performed using the Euler method starting from λ values equal to 5 HRTs or more, with $I=1$ and $C=C_0$ and using a time step of 0.01 min or smaller (as recommended by Zwietering (1959)).

4.2.1.2.1.3 The Partially Segregated model (Pseg)

The Partially Segregated model (Pseg) directly derives from the N-CSTR model. It assumes that the contactor is composed of several single CSTRs in series. In each CSTR, the disinfectant concentration is assumed to be constant and equal to the effluent concentration. Consequently, it offers an intermediate between the SFA and the MMA as the fluid is perfectly mixed in each CSTR but all reactors are distinct from the others. It was first proposed by Lawler and Singer (1993) as an improvement over the traditional T10 method and was shown to be conservative compared to the SFA method. As opposed to the Extended CSTR model (described later), the number of CSTRs does not have to exactly match the actual number of chambers in the process. This offers the possibility to apply the model to any reactor configuration and incorporate the impact of operational conditions on hydraulic performance which have been shown by Zhang et al. (2007) to significantly impact the RTD of ozone bubble contactors. The number of CSTRs is typically derived by fitting the hydraulic parameters (N and HRT) in Eq. 3 to a tracer curve. One limitation was that only integer values for N were permitted. As shown by Nauman and Buffham (1983), using fractional values of N can significantly improve the fit of tracer tests to the N-CSTR model. This approach was used for this work. Equation 12 describes the N-CTSR model with fractional values of N which will be referred hereafter as the Partially Segregated model (Pseg).

$$I_j = \frac{I_i}{\left(1 + \frac{k_L C_j HRT}{N}\right)^{j-i}} \quad (12)$$

where I_j is the microorganisms concentration after the j^{th} CSTR in series, I_i is the microorganisms concentration after the previous CSTR (*i.e.* the i^{th} CSTR) and at the inlet of the j^{th} CSTR. HRT and N are respectively the Hydraulic Residence Time and the number of CSTRs in series for the

entire contactor (determined from the tracer test fitting), and C_j is the disinfectant concentration after the j^{th} CSTR calculated as:

$$C_j = \frac{C_0}{\left(1 + \frac{k_D \text{HRT}}{N}\right)^j} \quad (13)$$

where C_0 is the initial concentration of disinfectant (after the immediate demand). The term j can be fractional if it is the last CSTR whereas i refers to the previous CSTR and is necessarily an integer. As an example, if the tracer test adjustment led to $N = 2.6$ CSTRs in series for the entire contactor, the microorganisms concentration is calculated after the first CSTR, after the second CSTR and after the 2.6th CSTR. The two first CSTRs have the hydraulic behaviour of a typical single CSTR whereas the last one behaves like 0.6 CSTR, i.e. includes by-passing as defined by Nauman and Buffham (1983).

4.2.1.2.2 US EPA models

US EPA models attach more importance to the physical configuration of the contactor (as the number of chambers and their volumes). The T10 and Extended T10 models also use the T10/HRT derived from the RTD but overall these models do not fully exploit the information contained in the RTD.

4.2.1.2.2.1 The T10 model

Due to its simplicity and regulatory application, the T10 model is the most commonly employed methodology to calculate disinfection performance in North America. However, it is probably the most often criticized model in the scientific literature (Lawler and Singer, 1993; Smeets et al., 2006) as it is known to underestimate (typically for low levels of inactivation) or overestimate (typically for high levels of inactivation) inactivation (Lev and Regli, 1992). The T10 model assumes that the reactor (or the chamber if the disinfectant concentration is measured after each chamber) behaves like a plug flow reactor with a HRT equal to T10 (which is the residence time for 10% of flow, estimated from the tracer test results and/or the physical configuration). Moreover, for reactive chambers, it conservatively considers that the fluid was only exposed to the effluent disinfectant concentration. Considering these two assumptions, the integration of Eq. (1) leads to:

$$I_{out} = I_0 \exp(-k_L \cdot C_{out} \cdot T_{10}) \quad (14)$$

Since most WTPs only measure disinfectant concentration at the exit of the contactor, the T10 model will only be applied on the whole contactor in this work, i.e. taking the disinfectant concentration at the reactor exit (and not at each chamber exit) and using the T10 of the entire contactor. For ozone contactors, this approach is typically too conservative. However, US EPA has proposed alternative models to solve this issue: the Extended T10 and the Extended CSTR models. Both will be described in the following sections.

4.2.1.2.2.2 The Extended T10 model

The Extended T10 model is quite similar to the T10 model as it is based on the same assumptions. It was developed to predict the performance of disinfection contactors composed of three or more consecutive reactive chambers for which the residual disinfectant concentration at the outlet is known. Under such scenario, disinfection performance are calculated for each chamber using Eq. (14) and the parameters values for the disinfectant decay (i.e. C_0 and k_D) inferred from the three residual disinfectant analyses (assuming a plug flow behaviour). More details on the procedure can be found in the LT2SWTR (United States Environmental Protection Agency (USEPA), 2010).

4.2.1.2.2.3 The Extended CSTR model

The procedure of the Extended CSTR model is the same as the Extended T10 method: the global performance of the reactor is obtained by summing up the ones of individual reactive chambers. The difference lies in the fact that the Extended CSTR model assumes that each chamber behaves as one CSTR and, consequently, the performance of the entire contactor behaves like N CSTRs in series, where N is equal to the physical number of chambers present. This method can only be applied on contactors with conventional configurations, i.e. contactors only composed of consecutive chambers separated by alternating baffles (such as ozone contactors). The disinfection performance is calculated for each chamber using the following equation (one can find it by performing the mass balance on a CSTR with Eq. (1) and integrating):

$$I_{out} = \frac{I_0}{1 + k_L C_{out} HRT_{chamber}} \quad (15)$$

where $HRT_{chamber}$ is the Hydraulic Retention Time of each chamber. The effluent disinfectant concentration (C_{out}) of each chamber is obtained following the procedure described in the LT2SWTR (United States Environmental Protection Agency (USEPA), 2010). This method presents many similarities to the Pseg method, the essential difference being that the value of N is derived from the physical configuration of the reactor rather than the RTD curve.

4.2.2 Pilot-scale disinfection experiments

4.2.2.1 Pilot unit configuration

In order to validate the predictions of disinfection models, a pilot-scale chlorine contactor was built to run a series of two *E. coli* inactivation experiments. As shown in Fig. 4-1, the pilot unit is composed of four chambers separated by three vertical baffles. It has a capacity of about 10 L (when the water level is stabilized at 14 cm from the bottom), which offers a HRT of 10 min for a flow of 1 L min^{-1} . The water enters the contactor at the bottom left corner and exits by a spillway located on the opposite side. The contactor was designed to reproduce an average hydraulic performance (i.e. T_{10}/HRT of ≈ 0.4).

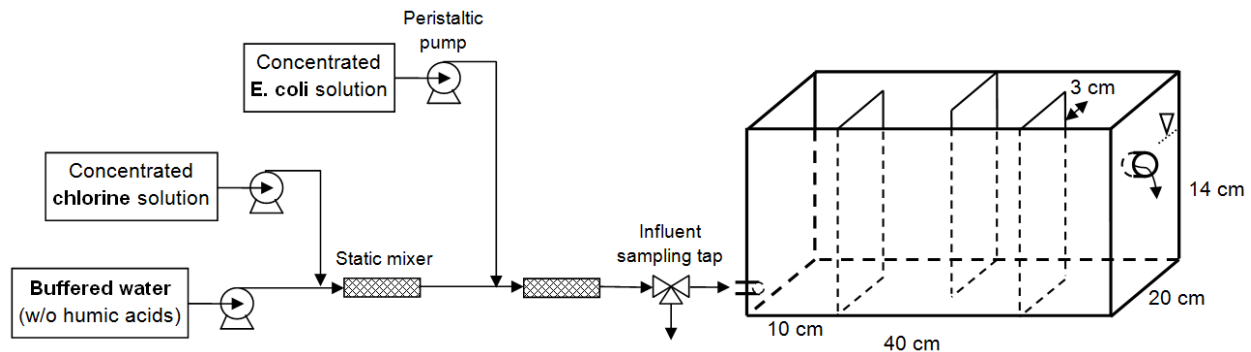


Figure 4-1: Schematic of the experimental pilot-scale contactor

4.2.2.2 Hydraulic behaviour

A step tracer test was performed in order to characterise the RTD of the contactor. Rhodamine (KEYACID RHODAMINE WT LIQUID I.D. 70301027) was used as tracer (diluted 10,000 times) and the test was realised using demineralised water. Rhodamine was injected upstream from the second static mixer (as the *E. coli* suspension during the inactivation assays) and measured at the reactor exit by spectrophotometry at 556 nm. The PFD and N-CSTR models

were used to fit the tracer results and determine the parameters describing the hydraulic performance (HRT, N and Pe).

4.2.2.3 Disinfectant decay and inactivation kinetics

Duplicate bench-scale inactivation assays were realized in order to define the batch kinetics parameters of disinfection decay (C_0 and k_D) and *E. coli* inactivation rate (k_L). These parameters are needed as inputs for all models. Much care was taken in order to minimize the sources of variability/uncertainty. For one, batch inactivation assays were done using the same initial *E. coli* concentration (I_0) as in the pilot and as much as possible, the same initial disinfectant concentration (C_0). In addition, those batch-scale inactivation assays were conducted on the same water and the same day than pilot-scale assays to minimize variability in *E. coli* inactivation rate. The kinetic parameters were determined by fitting Eq. 2 to disinfectant decay data and Eq. 9 to inactivation data. In order to evaluate the uncertainty related to the evaluation of kinetic parameters and most importantly, assess its impact on the predicted *E. coli* inactivation, a bootstrap analysis was realized. Assuming that the errors of the kinetic parameters were normally distributed, a series of 200 random set of input parameters (C_0 , k_D , k_L) was generated using the mean and standard errors of the fitted kinetic parameters to define three normal distributions. For the two operating conditions of the pilot contactor, it was then possible to calculate 200 inactivation levels based on these input values and the variable RTD information needed for each modeling approach.

4.2.2.4 Pilot-scale Disinfection Assays

Two disinfection experiments were carried out in order to check the validity of models in low and high disinfectant decay conditions. The first experiment was realised in a borate buffered demand-free water (pH 9.1, $\mu = 5$ mM). For the second experiment, humic acids (Aldrich, CAS number: 1415-93-6) were added in the buffered water at a concentration of 20 mg C/L in order to increase disinfectant decay. A stock solution of sodium hypochlorite (20 mg Cl₂/L) was used as a disinfectant and injected upstream from the first static mixer (see Fig. 4-1) to yield influent free chlorine residual of approximately 0.4 mg Cl₂/L. Free chlorine residual was measured with the DPD method 4500-Cl G from Standard Methods (American Public Health Association (APHA) et al., 2005). A concentrated solution of *E. coli* (around 8.5 log/mL) was produced by incubating twice an environmental strain in sterile TSB (Trypticase Soy Broth) for 18h at 35°C. The

suspension was centrifuged and rinsed three times, resuspending it each time in fresh buffered water. The final product was filtered on an 11 μm membrane (Whatman® paper filter) to remove possible aggregates. *E. coli* analysis was done by membrane filtration using the MI culture media (Difco™ MI Agar ref. 214 882). *E. coli* injection was done for 5 HRTs. Effluent samples were collected after 3.0, 3.5 and 4.0 HRTs (i.e. when permanent state was reached).

4.3 Results and Discussion

4.3.1 Selection of a macromixing hydraulic model to fit tracer tests

4.3.1.1 Adjustment to tracer test results

Fig. 4-2 presents the adjustment of the N-CSTR and PFD models for the four plants for which tracer studies were available as well as the pilot-scale chlorine contactor. Table 4.1 summarizes the fitted model parameters. Despite the fact that the shape of the tracer curves and the HRT varied from 6 to 162 min, both models provided a good fit to the experimental data. The fit of the PFD model was somewhat superior for the initial data points (more clearly visible for Chomedey, Repentigny and Jonquière) whereas the N-CSTR model appears to better describe the end of the tracer curves (Repentigny and Jonquière). For the pilot-scale contactor, the PFD model offered a better adjustment as it closely fitted the beginning and the end of the experimental curve. However, the validity of the last measurements was questionable since the tracer concentration decreased at several occasions. Both models gave a HRT of 10 min which agreed with the theoretical HRT calculated with the flow and the volume of the pilot-scale contactor. Overall, the hydraulic performance of the all contactors was average (T_{10}/HRT around 0.4) except for the Des Bailleurs ozone contactor for which a T_{10}/HRT ratio of 0.6 was measured. Interestingly, this ozone contactor is only composed of four chambers separated by three baffles (a sketch of the contactor can be viewed in Zhang et al. (2008)). This high hydraulic performance appears to be due to the operational conditions inside the reactor, i.e. the flow pattern induced by the bubble gas injection is favorable. This example clearly brings out that the hydraulic behaviour of an ozone contactor does not only depend on its physical configuration, i.e. the number of chamber in series (as suggested by the EPA's CSTR or Extended CSTR methods). It may also be strongly dependent on other design details such as the inlet pipe design (Dooil et al., 2010; Greene et al., 2006; Kim et al., 2010) and the operational conditions. Although both models provided an

excellent fit to the experimental data, they provided very different predictions of inactivation as will be shown in the next section.

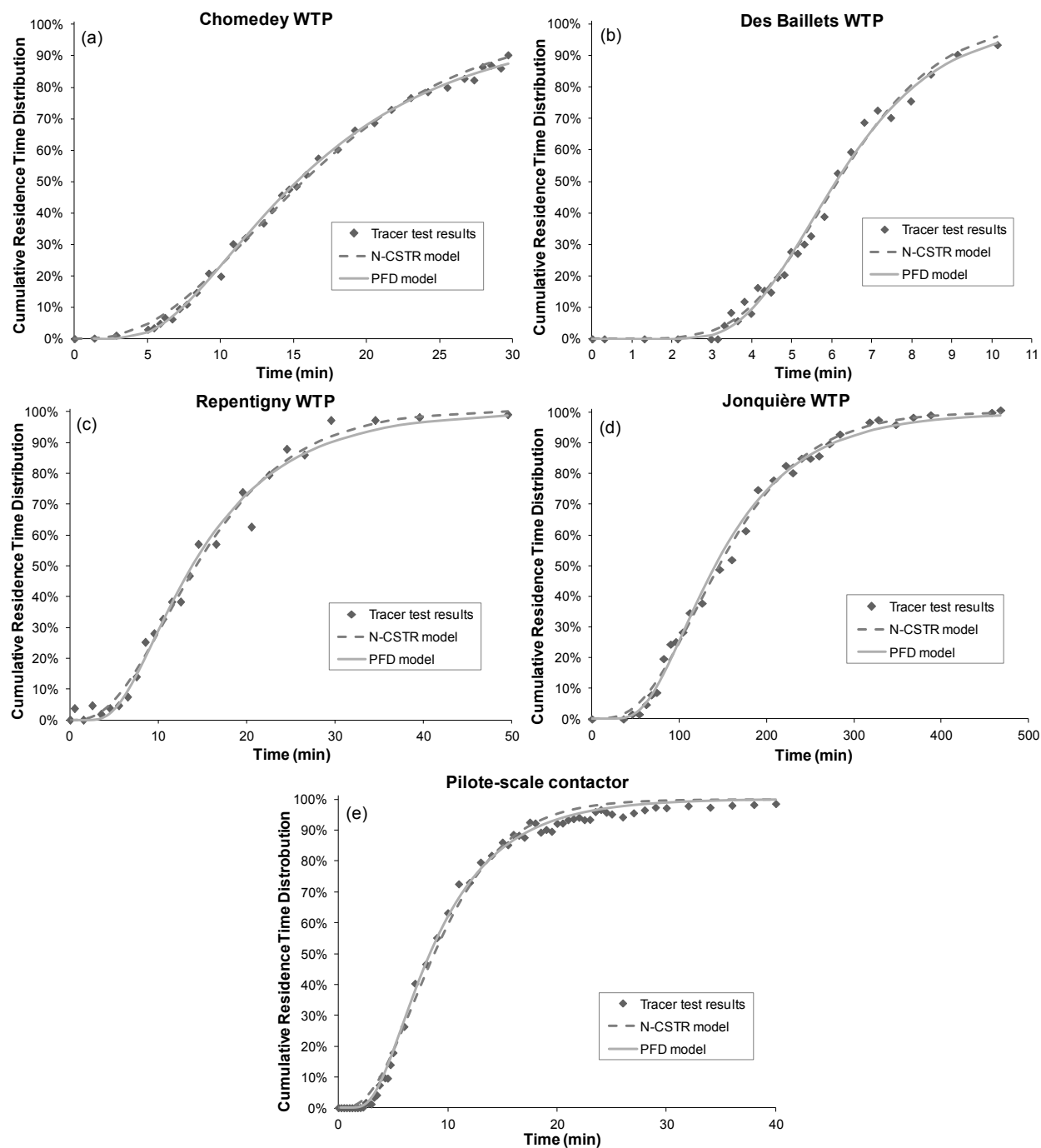


Figure 4-2: Cumulative RTDs from 4 Water Treatment Plants (WTP) and the pilot-scale contactor, adjusted with N-CSTR and PFD models

Tableau 4.1: WTPs and pilot-scale contactor characteristics with the macromixing parameters obtained

	Water Treatment Plant				Pilot-scale contactor
	Chomedey	Des Bailleurs	Repentigny	Jonquière	
Type of contactor	Ozone	Ozone	Ozone	Chlorine	Chlorine
Flow (m³/d)	30,000	187,000	24,000	22,700	1.5
Measured T10/HRT	0.42	0.61	0.42	0.46	0.43
N-CSTR Model					
HRT (min)	17	6	16	159	10
N	3.4	10.2	3.1	4.0	3.4
R ²	0.997	0.992	0.990	0.996	0.995
PFD Model					
HRT (min)	18	6	16	162	10
Pe	4.1	17.2	3.9	5.5	4.1
R ²	0.998	0.992	0.989	0.995	0.998

HRT: Hydraulic Retention Time, N: Number of CSTRs in series, Pe: Number of Peclet

4.3.1.2 Impact of macromixing model on the predictions of inactivation

In order to compare the impact of the macromixing model selection on predictions of disinfection performance, microbial inactivations were calculated applying the MMA on the fitted RTDs. In order to perform these calculations, values of k_L , C_0 and k_D were needed. The values of k_L were selected to represent the worst and highest possibilities, *i.e.* the inactivation of *Cryptosporidium* (or *Giardia* in the case of chlorine contactors) in cold water and the inactivation of viruses in warm water, respectively. The disinfectant decay parameters (C_0 and k_D) were fixed arbitrarily using realistic values according to the disinfectant used. Table 4.2 summarizes the results of this analysis. Under the worst conditions (*i.e.* when the inactivation is minimum), both models give the same results with parasite inactivation varying between 0.2 and 0.7 log. On the opposite, for the best conditions (*i.e.* highest inactivation) large differences are observed between the predictions of the two models. The PFD model leads to virus inactivation levels (expressed in log) about 2 to 3 times higher to those obtained with the N-CSTR model. For example, ozone inactivation of viruses at Repentigny WTP varied respectively from 5.2 to 14.3 log for the N-CSTR and PFD model, although both models were well fitted (with R^2 equal to 0.99) with either hydraulic model. As shown in Haas et al. (1997), for an equivalent level of dispersion and HRT, the two models present some differences in the shape of their Residence Time Distributions. The

N-CSTR distribution is characterised by an earlier start, which means that a part of the fluid exits the contactor sooner than in the PFD model (this can be viewed in Fig. 4-2). Moreover, for high inactivation rates (as for viruses in summer), the final inactivation obtained is strongly determined by the first percentages of flow exiting the contactor whereas for low inactivation rates (typical of *Cryptosporidium* in winter), the final inactivation is governed by the entire RTD curve. This phenomenon is due to the logarithmic nature of microbial inactivation which makes negligible the quantity of microorganisms exiting the reactor with the remaining flow in comparison with the quantity of microorganisms which rapidly exited due to short-circuiting. Consequently, a small difference in the early rise of the breakthrough curve has dramatic impact on the final inactivation when the inactivation rate is high (as observed in Table 4.2). These results highlight the large impact of the hydraulic model on the evaluation of the level of inactivation achieved. Since the N-CSTR model is more conservative than the PFD model, it should be preferred when both models are equally suitable or when the measurement error in the tracer tests is important.

Tableau 4.2: Inactivation predictions in worst and best conditions according to Micro-Mixed Analysis

	Water Treatment Plant							
	Chomedey		Des Baillets		Repentigny		Jonquière	
Conditions								
Disinfectant	Ozone		Ozone		Ozone		Chlorine	
Microorganism	Crypto.	Virus	Crypto.	Virus	Crypto.	Virus	Giardia	Virus
Temperature (°C)	1	25	1	25	1	25	1	25
Parameters								
k _L (L/mg.min)	0.1	30	0.1	30	0.1	30	0.03	5
C ₀ (mg/L)	1		1		1		1	
k _D (min ⁻¹)	0.1		0.1		0.1		0.01	
Inactivation with MMA (log)								
N-CSTR model	0.3	5.4	0.2	10.8	0.3	5.2	0.7	6.9
PFD model	0.3	14.6	0.2	17.5	0.3	14.3	0.6	23.0

Crypto.: *Cryptosporidium*, k_L : Lethality constant of microorganism, C_0 : Initial concentration of disinfectant, k_D : Decay constant of disinfectant, MMA: Micro-Mixing Analysis

4.3.2 Comparing the predictions from various inactivation models

Fig. 4-3 presents the predictions of inactivation using five different models (MMA, SFA, T10, Extended T10, Pseg) tested under four conditions: a contactor with a poor hydraulic efficiency

($T_{10}/HRT = 0.27$ corresponding to 2 CSTRs in series) versus a contactor with a good hydraulic efficiency ($T_{10}/HRT = 0.58$ corresponding to 8 CSTRs in series), both experiencing either a low or high disinfectant decay (compared with their hydraulic retention time meaning that $HRT \times k_D = 1$ or 100). Inactivation calculation using US EPA methods requires defining the physical configuration of the contactors. It was assumed that the first contactor is composed of two reactive chambers in series and the second contactor is composed of eight reactive chambers in series. Each chamber has the hydraulic efficiency of a single CSTR and the contactors hydraulic behaviours concerning the macromixing are so characterised by the RTD curves of two and eight CSTRs in series. Finally, the Extended T_{10} method was not applied to the configuration with 2 CSTRs in series (Fig. 4-3a and 4-3b) as US EPA recommends using it only for three or more consecutive reactive chambers.

Under a condition for which disinfectant decay is low (Figs. 4-3a and 4-3c), the differences between the SFA and the MMA are limited and independent of the dimensionless rate constant (K). Under low disinfectant decay, inactivation kinetics becomes pseudo-first order and, under such circumstances, theory dictates that the level of micromixing does not impact the reactor's performance (Fogler, 2006). On the opposite, when disinfection decay is high ($HRT \times k_D = 100$), an important difference evolves between the SFA and MMA models as the dimensionless constant (i.e. the level of inactivation) increases. For instance, assuming that the poor hydraulic contactor of Fig. 4-3b uses ozone as a disinfectant and has a HRT equals to 60 min, the water temperature is 30°C (which gives a k_L of 37 L/mg.min for viruses) and the initial ozone concentration is equal to 4.5 mg/L (resulting in a dimensionless rate constant of 10,000), the predicted virus inactivation varies from 2.1 log for the MMA model up to 7.4 log with the SFA model. As can be seen by comparing Fig. 4-3b and 4-3d, the difference between the predictions of the SFA and MMA models diverge even more when the hydraulic efficiency of the contactor is higher. Using the same example as above ($K=10,000$), virus inactivation for the MMA model totals 2.1 log as opposed to 25.2 log for the SFA model. It is important to point out that these discrepancies originate mainly from the large variations in the predictions of the SFA model. The predictions of the MMA model remain fairly constant.

The MMA and SFA models represent extreme conditions of micromixing. Consequently, actual disinfection performance of any contactor must be located between the predicted inactivations of these two boundaries. Reviewing the predicted inactivations given in Fig. 4-3 by the US EPA

methods (T10 and Extended T10), it is noticeable that they are rarely found within the expected boundaries of the MMA and SFA models. When disinfectant decay is low, US EPA methods slightly underestimate the inactivation (1 log or less) for small dimensionless rate constant values which may be a significant concern for utilities targeting low inactivation (e.g. 1 log of *Cryptosporidium*). For high values of the dimensionless rate constants (K), US EPA methods largely overestimate inactivation. These results are coherent with those found by Lev and Regli (1992) which showed that the T10 method overestimated inactivation when the level of inactivation became important, especially for contactors with poor hydraulic performance. The T10 method mainly over or underestimate inactivation since it considers that the whole flow remains in the contactor for a time equal to the T10. For some conditions, the flow fraction exiting the reactor before the T10 may control the reactors performance. In such a case (as it is often the case with viruses), overestimation of inactivation is to be expected. For other conditions, the entire RTD contributes to the disinfection process as the inactivation kinetics is in a slower regime.

As expected, the predictions of the Extended T10 model (Fig. 4-3c and 4-3d) are higher than the T10 method because the residual disinfectant concentrations are slightly higher with this technique. When the disinfectant decay is high, the T10 method considerably underestimates inactivation (up to 2.5 log compared to the MMA predictions). For high disinfectant decays, the residual concentration at the contactor exit is very low or even nil which leads to these underestimations and explains that the predicted inactivations remain at zero in Fig. 4-3d. For this condition, the Extended T10 method provide results similar to the SFA for most values of K values although it overestimates inactivation for high values of K (10,000 and more). From Figs. 4-3c and 4-3d, we conclude that the use of the Extended T10 method is preferable to the T10 method for conditions where high disinfectant decay exists (such as for ozone contactor). Nevertheless, if one accepts that the true performance should lie between the predictions of the MMA and SFA models, predictions of inactivation performance may be largely overestimated for conditions of low disinfectant demand (Fig. 4-3c) and are probably too optimistic for conditions of high disinfectant demand (Fig. 4-3d).

The last model investigated, the Partially Segregated method (Pseg), predicted intermediate performance between the MMA and SFA models. Predictions were however typically much closer to the ones of the MMA model, exception made of the condition of low disinfectant

demand and high hydraulic efficiency (Fig. 4-3c). The Pseg model assumes that the contactor is composed of several distinct CSTRs in cascade, each CSTR being completely micromixed (as usually defined). Thus, even if the CSTRs are fully micromixed, they are separated one from another which inherently provides some level of segregation. The level of segregation is correlated to the number of CSTRs in series, which explains why the Pseg model differs more from the MMA model when the hydraulic efficiency is higher. This model hypothesis (i.e. the segregation increases as the number of CSTRs in series increases) is physically plausible and is also supported by the CFD simulations carried out by Wols et al. (2006). Their results showed that the ozone concentration is relatively homogeneous inside each chamber (especially when the number of baffles increases) and that the differences in residual ozone from one chamber to another were significant. The results indicate that the short-circuiting flow is at least exposed to the mean residual concentration of each chamber, if not more. In summary, the partially segregated model appears as a good compromise between the necessary precaution needed in protecting public health (as it gives more conservative results than the SFA model) and the complexity of implementation as it is by far simpler than the MMA model. The N-CSTR model is typically taught in basic environmental engineering courses and it should therefore be anticipated that it could be widely adopted by practicing engineers. This technique is also more reliable than the US EPA methods (T10 and Extended T10) as these last either underestimate or overestimate inactivation. These methods are especially not recommended in the context of performing a Quantitative Microbial Risk Analysis (QMRA).

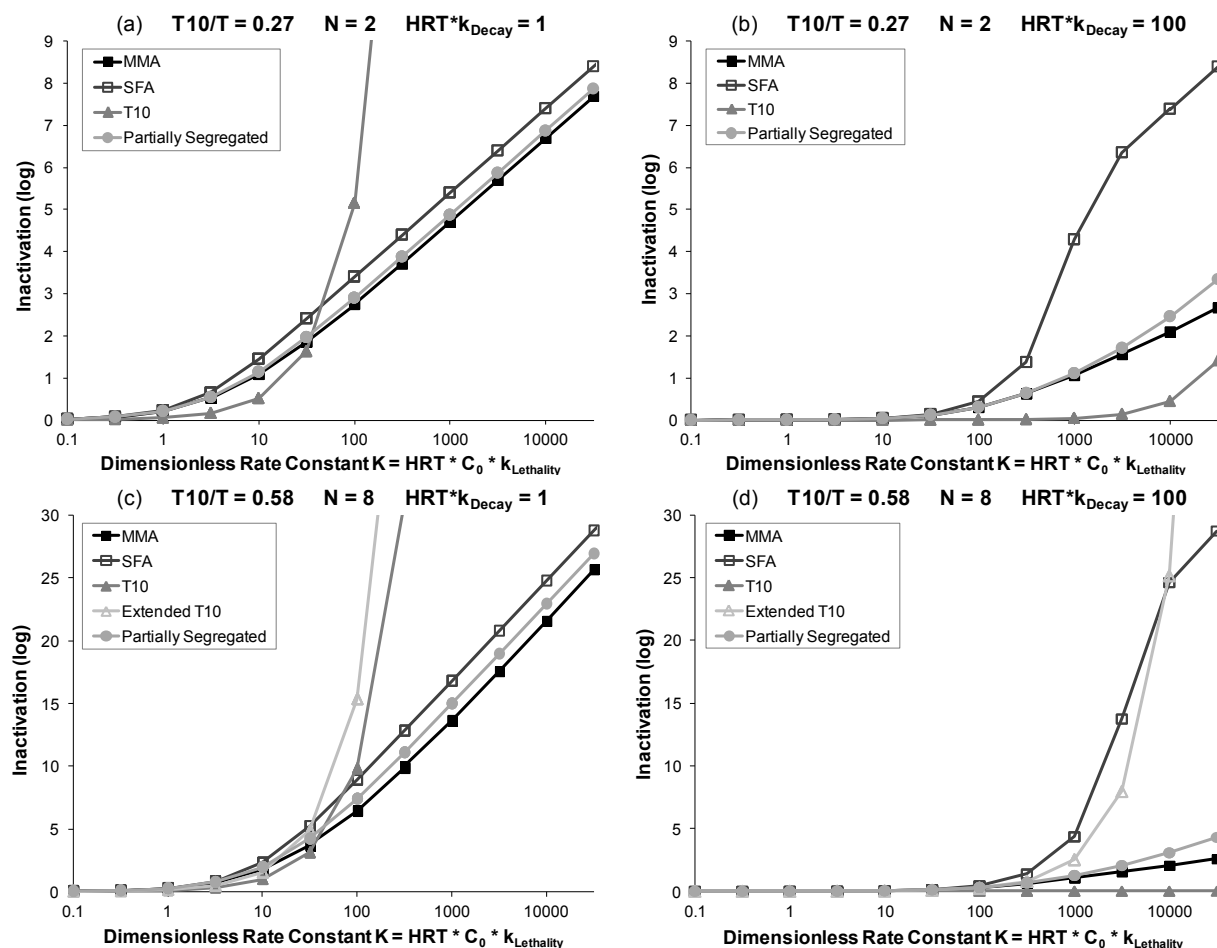


Figure 4-3: Predicted inactivation levels for poor/good hydraulic efficiencies and low/high disinfectant decay

4.3.3 Validation of predictive inactivation models

E. coli chlorination assays were conducted under low and high disinfectant decay conditions using the lab-scale contactor described earlier. Actual inactivations measured experimentally were compared to the predictions derived from the various modeling approaches. The following sections report on this investigation.

4.3.3.1 Assays conducted under low disinfectant decay condition

Prior to running the pilot-scale, bench-scale assays were conducted to measure experimentally the chlorine decay and *E. coli* inactivation kinetics. Table 4.3 summarizes the first-order decay and Chick-Watson kinetic parameters fitted respectively to chlorine decay and *E. coli* inactivation.

Chlorine decay and *E. coli* inactivation were well fitted with the selected kinetics. As expected, chlorine decay was minimal ($k_D = 0.04 \text{ min}^{-1}$) in the absence of organic matter.

Tableau 4.3: Measured kinetic parameters

	Without humic acids			With humic acids		
	Estimate	Standard error	R ²	Estimate	Standard error	R ²
Disinfectant decay						
C ₀ (mg/L)	0.31	0.002	0.956	0.43	0.008	0.996
k _D (min ⁻¹)	0.04	0.003		0.88	0.022	
Inactivation reaction						
k _L (L/mg.min)	29.3	1.29	0.965	28.3	3.77	0.745

C_0 : Initial concentration of disinfectant, k_D : Decay constant of disinfectant, k_L : Lethality constant of microorganism

Fig. 4-4 presents the comparison of the experimental result obtained in the lab-scale pilot experiment (defined as EXP.) with the predicted inactivation from each model. The first three displayed results were obtained using the methods suggested by the US EPA. The T10/HRT is derived from the tracer test and the information needed for the use of the Extended T10 and Extended CSTR methods are based on the physical configuration of the contactor. The other two series of predictions use either the PFD model or the N-CSTR model to fit the tracer test. Once macromixing has been characterized with one of these two models, predictions are made for both the MMA and the SFA models in order to provide the lower and the upper bound of inactivation accounting for the level of micromixing. Finally, the Pseg model is per definition a N-CSTR type of model.

The observed experimental inactivation averaged 5.9 ± 0.5 log. The T10 and Extended T10 methods largely overestimated this performance as median inactivations of 11.5 log and 13.2 log were respectively predicted by these two models. Such observation is coherent with the theoretical calculations provided earlier in Fig 4-3a for a low disinfectant decay and a dimensionless rate constant close to 100 ($K = 90$ for the current condition). Predictions resulting from the PFD adjustment of the RTD curve also overestimated the true performance. Four models predicted lower inactivations than what was experimentally measured: the Extended CSTR and the three models derived from the N-CSTR adjustment of the RTD curve. The Extended CSTR model gave the prediction (5.1 log) closest to the actual measured performance

(5.9 log). All predictions derived from the N-CSTR adjustment are slightly inferior but still in an acceptable range (4.3-4.8 log).

From Fig. 4-4, it is notable that none of the tested models perfectly predicted the experimental results. This observation is most likely not related to the uncertainty arising from the chlorine decay and inactivation parameters which are described on Fig. 4-4 through the use of whisker-boxes. These deviations may have been caused by uncertainty in the RTD curve or variability in the operation of the pilot-scale contactor. It may also highlight the limits of these models to fully describe the complicated phenomena occurring inside a contactor. Nevertheless, some models were vastly superior to others in providing a good estimate of the true performance. All these models used a variation of the N-CSTR approach. The next section will help us assess if this conclusion is applicable for conditions of high disinfectant decay.

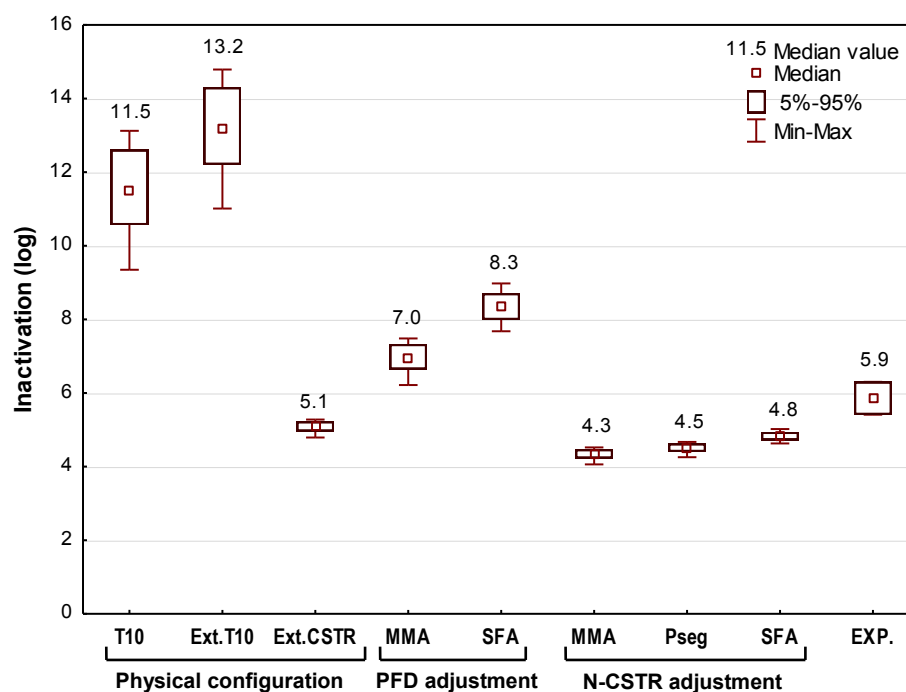


Figure 4-4: Comparison of modelled and experimental results for low disinfectant decay condition. For modelled results, whisker-boxes were obtained from 200 bootstrap predictions accounting for uncertainty in bench-scale disinfectant decay and inactivation kinetics.

4.3.3.2 Assays conducted under high disinfectant decay condition

As expected, the addition of humic acids had a large impact on disinfectant decay. First-order chlorine decay parameter rose from 0.04 min^{-1} in the absence of organic matter to 0.88 min^{-1}

(Table 4.3). The fit with the Chick-Watson kinetics was less good ($R^2 = 0.75$) but the value of k_L was not statistically different ($p = 0.76$) in the presence or absence of organic matter.

From Fig. 4-5, it can be found that the experimental inactivation achieved in the pilot-scale contactor was 2.3 ± 0.7 log under this condition. This represents a significant reduction of performance compared to the condition in the absence of humic substances (5.9 ± 0.5 log). Interestingly, the behaviour of the different predictive models differed largely from the low disinfectant decay condition. Firstly, the T10 method now considerably underestimates the true performance (0.3 versus 2.3 log). The Extended T10 model (2.5 log) is in good agreement with the experimental results (2.3 log). However, it presents an important variability which could lead to large overestimations. These conclusions are coherent with the results showed in Fig. 4-3b. The Extended CSTR model (2.0 log) and the Partially Segregated model (1.9 log) were not statistically different than the experimental results ($p = 0.76$ and 0.57 respectively). For both macromixing adjustments (PFD and N-CSTR), the SFA largely overestimates the inactivation (more than twice the predicted log of inactivation) which seems to confirm the hypothesis that complete segregation does not apply to water disinfection conditions and is only valid for very viscous fluids (Nauman and Buffham, 1983). Moreover, they present a great variability in their predictions and so do not appear very stable to small changes in kinetic parameters. The predictions of the MMA models underestimate the inactivation by less than 1 log and are in fact quite similar regardless of the macromixing model chosen.

In summary, considering results obtained under low and high disinfectant decay conditions, our conclusion is to the effect that the Extended CSTR model, the MMA with N-CSTR adjustment and the Partially Segregated Model should be favored. The other models are not reliable and can lead to major overestimations or underestimations of performance. Among these three models, the MMA is by far the most complicated one to implement at a water utility. It is computationally-intensive and sensitive to the algorithm used to converge toward a solution. For these reasons, the MMA with N-CSTR adjustment is not recommended. Out of the two models left (Extended CSTR and Pseg), we recommend using the Pseg method. Even though the Extended CSTR model was well suited for the current application, the assumption of this method that each chamber behaves as a CSTR may be inappropriate to some physical configuration as was shown by Kim et al. (2010) for an ozonation contactor and for the Des Baillets ozone contactor (see section 3.1.1).

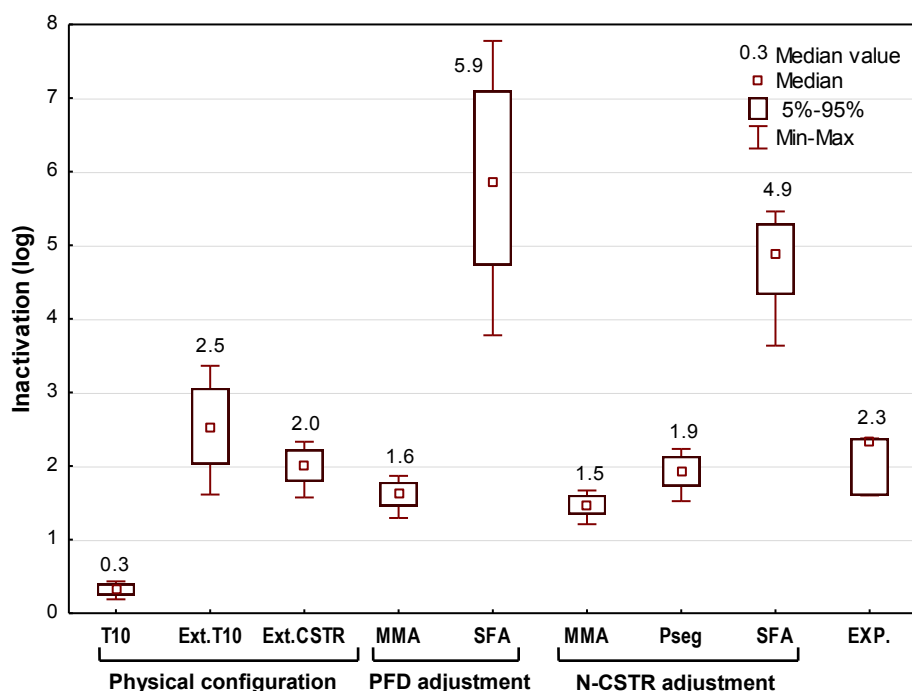


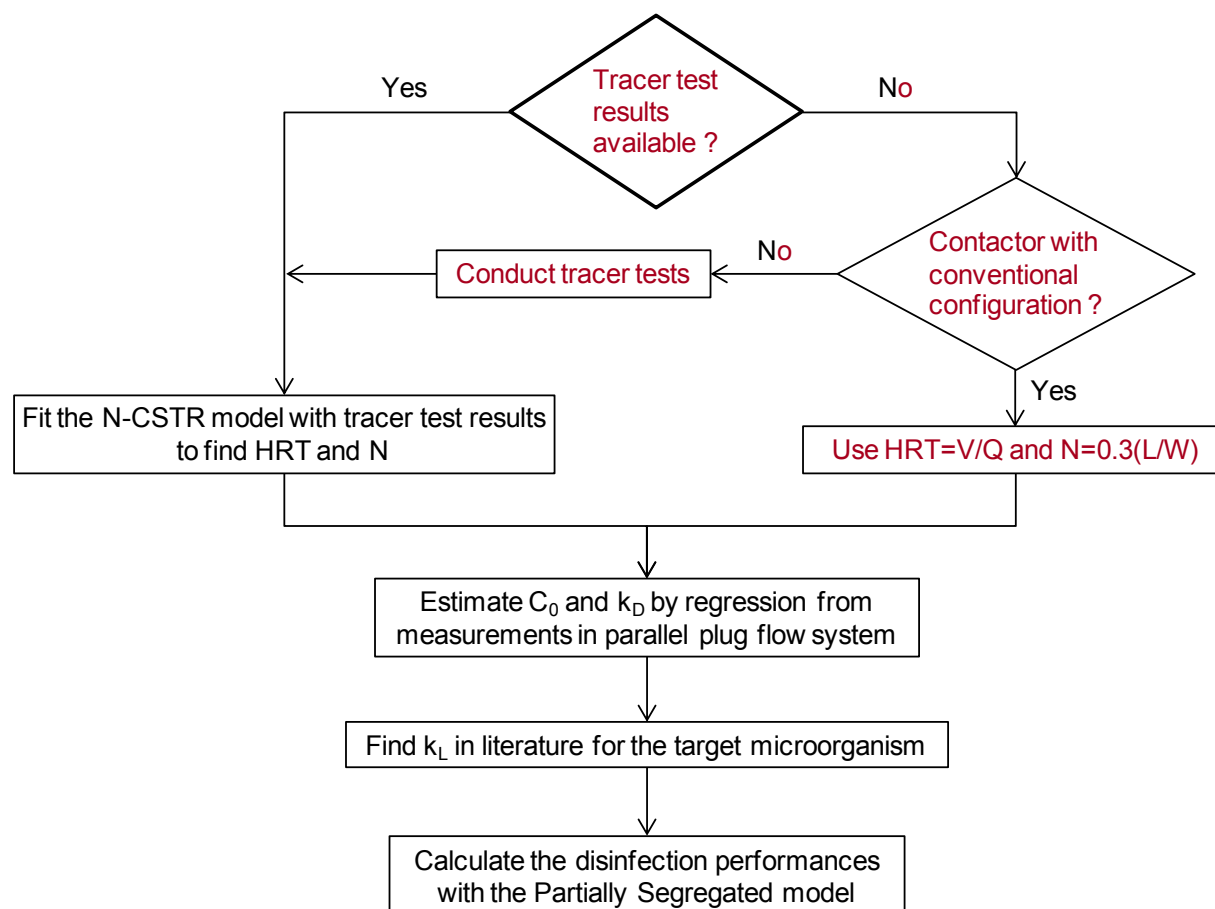
Figure 4-5: Comparison of modelled and experimental results for high disinfectant decay

4.3.4 Recommendations to water utilities

More than 20 years after the landmark inclusion of the CT10 concept in the US EPA regulation, only minor advances have been made toward the goal of having improved on-line evaluation of the performance of drinking water disinfection processes. This article clearly highlights the challenges of using alternative modeling approaches based on the RTD distribution. In the late 1990s, the Integrated Disinfection Framework approach was proposed as an alternative methodology (Bellamy et al., 1998; Carlson et al., 2001). It relied on the use of the SFA which has been shown by Wols et al. (2010) as well as in this work to overestimate disinfection performance. CFD techniques are promising but their use will most likely be restricted to large water utilities due to financial constraints. Recognizing the deficiencies of the T10 approach, the LT2SWTR Guidance Manual introduced two new techniques, the Extended T10 and Extended CSTR. Although the latter may be a good candidate for implementation at a given water utility, we recommend using a methodology described in Fig. 4-6 which is based on the Pseg model. When tracer tests are available, the macromixing N-CSTR model is used to fit the experimental data and determined the values of HRT and N. This can be done in any commercial spreadsheet equipped with a solver. When tracer tests are unavailable, we strongly recommend conducting

these tests. It is unfortunate to note that so many utilities still rely on theoretical T10/HRT estimates based on the Table first developed by the US EPA in the 1989 STWR Guidance Manual. This being said, those wanting to estimate the HRT and N using the flow and physical configuration of the reactor should first assess if they have a conventional reactor configuration as defined in the US EPA Toolbox (2010). If so, we recommend that the number N of reactors in series be calculated based on the correlation found by Crozes et al. (1999). They noted a strong correlation between the L/W ratio (length over width) and the T10/HRT ratio in pilot as well as for two full-scale contactors. Using this dataset, a conservative proportionality coefficient of about 0.3 CTSR per L/W unit can be calculated by plotting the number of CSTRs with respect to the ratio L/W (Fig. 4-7). This ratio was obtained by taking the inferior tangent of the curve produced by Crozes et al. (1999). This approach prevents from getting excessive values of CSTRs in series when the L/W ratio becomes important (as N tends to infinity when T10/HRT comes close to 1). It also provides a safety margin considering that this approach does not consider inlet/outlet designs which are known to impact the RTD.

For contactors with non-conventional configuration (as well as for contactors which would justify a better hydraulic performance than the one allocated), tracer tests are required since the hydrodynamic behaviour cannot be correctly determined otherwise. Before performing tracer tests, one should read the recommendations produced by Zhang et al. (2008) in addition to those from Teefy (1996) in order to get significant results. The estimation of the C_0 and k_D can be realised through a side-stream plug flow system as fully described in Rakness et al. (2005). Finally, disinfection performance can be calculated using the Partially Segregated model and the value of k_L which can be found in the literature or in the US EPA documents. It should be noted that in its recent publications, US EPA uses a log base 10 inactivation coefficient (k_{10}) which is equal to k_L divided by $\ln(10)$.



HRT: Hydraulic Retention Time of the contactor, N: Number of CSTRs in series allocated, V: Volume of the contactor, Q: Flow, L: Total Length of all chambers put end to end, W: Width of a chamber, C_0 : Initial Concentration of disinfectant (after immediate demand), k_D : Disinfectant Decay constant, k_L : Lethality constant of microorganism

Figure 4-6: Procedure for evaluating the disinfection performance in reactive contactor

This procedure can also be applied to calculate the removal performance of compounds whose kinetics, similarly to microorganisms, obeys a second order kinetics. The performance calculated from the tracer test results are in principle only valid for the flow conditions that prevailed during the tracer test. However, if the calculation of the HRT from the flow and the volume is validated by the value obtained from the tracer test (which should logically be the case), the HRT can then always be calculated using the measured flow and the water level. On the other hand, the hydraulic performance (the value of N) may be related to the flow conditions. However, the variations in hydraulic performance are often fairly limited as observed in many studies (Dooil et al., 2010; Ducoste et al., 2001; Kim et al., 2010). For ozone contactors using bubble diffusion, variations in gas flow may also impact hydraulic efficiency. Consequently, other tracer tests should be performed to validate the assumption of constant hydraulic performance (and at the

same time of the HRT calculations) or establish a global correlation between the operational conditions and the hydraulic performance of the contactor (N).

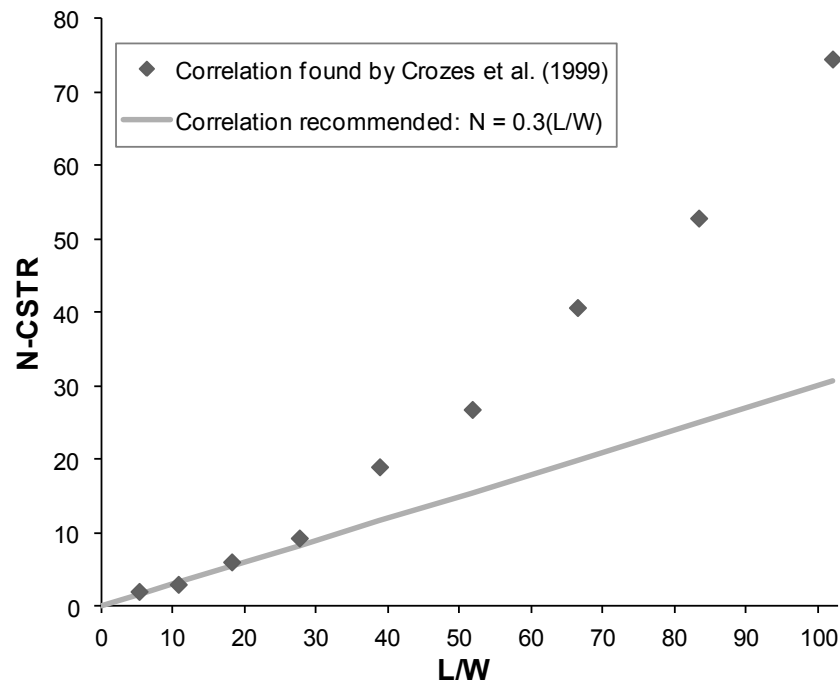


Figure 4-7: Correlation between L/W and N

4.4 Conclusions

The present work showed that macromixing hydraulic models using two parameters were sufficient to correctly describe tracer tests results. However, it was also shown that minute differences in the model description of the early breakthrough led to large differences in predicted inactivation. For this reason, the N-CSTR model was preferred over the Plug Flow with Dispersion model as it provided more conservative predictions. The N-CSTR model also allowed the use of the Pseg model which was shown to be the best compromise of rendering reliable predictions of *E. coli* under both low and high disinfectant decay conditions as well as offering simplicity of implementation. The T10 and Extended T10 methods developed by the US EPA were prone to large deviations from actual *E. coli* inactivation and are therefore not recommended. The SFA analysis is also not recommended due to its inactivation predictions being largely too optimistic in the presence of a disinfectant decay (the usual conditions prevailing in the water industry). The MMA model provided conservative estimates but its implementation in the water industry is deemed too complex and labor-intensive. Considering all

of the above, the use of the Pseg model appears as a good alternative disinfection model for water utilities aiming to better describe the actual performance of their disinfection processes. Future work should be devoted to comparing predictions of the Pseg models for other disinfectant and microbes.

Acknowledgements

The authors would like to acknowledge Mélanie Rivard for having realised the growth and the analysis of *E. coli*, Erika Déziel for her important help during the execution of the pilot and batch experiments and Mireille Blais and Yves Fontaine for their assistance in the pilot construction and assembly. This work was completed at the Industrial-NSERC Chair in Drinking Water of Polytechnique Montreal with the financial support of its partners, namely the City of Montreal, John Meunier Inc. and the City of Laval.

References

- American Public Health Association (APHA), American Water Works Association (AWWA), Water Environment Federation (WEF), 2005. Standard methods for the examination of water and wastewater (21th Edition), Washington, DC, USA.
- Bellamy, W.D., Finch, G.R., Haas, C.N., 1998. Integrated disinfection design framework. American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.
- Carlson, K., Pier, D., Bellamy, W., Carlson, M., Ducoste, J., Amy, G., Rakness, K., 2001. Implementation of the integrated disinfection design framework. American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association: Denver, Colorado, USA, p. 152.
- Craik, S.A., 2005. Effect of micro-mixing conditions on predictions of *Cryptosporidium* inactivation in an ozone contactor. *Ozone: Science and Engineering* 27(6) 487-494.
- Crozes, G.F., Hagstrom, J.P., Clark, M.M., J., D., C., B., 1999. Improving Clearwell Design for CT Compliance. American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.
- Dooil, K., Semih, N., Roberts, P.J.W., Jae-Hong, K., 2010. Ozone-contactor flow visualization and quantification using three-dimensional laser-induced fluorescence. *Journal / American Water Works Association* 102(1) 90-99.
- Ducoste, J., Carlson, K., Bellamy, W., 2001. The integrated disinfection design framework approach to reactor hydraulics characterization. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* 50(4) 245-261.

Fogler, H.S., 2006. Elements of chemical reaction engineering, 4th ed. Upper Saddle River, New Jersey.

Greene, D.J., Haas, C.N., Farouk, B., 2006. Computational fluid dynamics analysis of the effects of reactor configuration on disinfection efficiency. *Water Environment Research* 78(9) 909-919.

Haas, C.N., Joffe, J., Heath, M., Jacangelo, J., Anmangandla, U., 1998. Predicting disinfection performance in continuous flow systems from batch disinfection kinetics. *Water Science and Technology* 38(6) 171-179.

Haas, C.N., Joffe, J., Heath, M.S., Jacangelo, J., 1997. Continuous Flow Residence Time Distribution Function Characterization. *Journal of Environmental Engineering* 123(2) 107-114.

Kim, D.-I., Hasan, S., Tang, G., Marinas, B.J., Couillard, L., Shukairy, H., Kim, J.-H., 2007. Simultaneous simulation of pathogen inactivation and bromate formation in full-scale ozone contactors by computer software. *Journal / American Water Works Association* 99(8) 77-91+12.

Kim, D., Elovitz, M., Roberts, P.J.W., Kim, J.-H., 2010. Using 3D LIF to investigate and improve performance of a multichamber ozone contactor. *Journal / American Water Works Association* 102(10) 61-70.

Kim, J.-H., Rennecker, J.L., Tomiak, R.B., Marinas, B.J., Miltner, R.J., Owens, J.H., 2002. Inactivation of *Cryptosporidium* oocysts in a pilot-scale ozone bubble-diffuser contactor. II: Model validation and application. *Journal of Environmental Engineering* 128(6) 522-532.

Lawler, D.F., Singer, P.C., 1993. Analyzing disinfection kinetics and reactor design: a conceptual approach versus the SWTR. *Journal of the American Water Works Association* 85(11) 67-76.

Lev, O., Regli, S., 1992. Evaluation of ozone disinfection systems: characteristic time T. *Journal of Environmental Engineering* 118(2) 268-285.

Levenspiel, O., 1999. Chemical reaction engineering, 3rd ed. Wiley, New York ; Toronto.

Martin-Dominguez, A., Tzatchkov, V.G., Martin-Dominguez, I.R., Lawler, D.F., 2005. An enhanced tanks-in-series model for interpretation of tracer tests. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* 54(7) 435-448.

Nauman, E.B., Buffham, B.A., 1983. Mixing in continuous flow systems. Wiley, New York.

Rakness, K.L., Najm, I., Elovitz, M., Rexing, D., Via, S., 2005. *Cryptosporidium* log-inactivation with ozone using effluent CT₁₀, geometric mean CT₁₀, extended integrated CT₁₀ and extended CSTR calculations. *Ozone: Science and Engineering* 27(5) 335-350.

Smeets, P.W.M.H., van der Helm, A.W.C., Dullemon, Y.J., Rietveld, L.C., van Dijk, J.C., Medema, G.J., 2006. Inactivation of *Escherichia coli* by ozone under bench-scale plug flow and full-scale hydraulic conditions. *Water Research* 40(17) 3239-3248.

Tang, G., Adu-Sarkodie, K., Kim, D., Kim, J.-H., Teefy, S., Shukairy, H.M., Marinas, B.J., 2005. Modeling *Cryptosporidium parvum* oocyst inactivation and bromate formation in a full-scale ozone contactor. *Environmental Science and Technology* 39(23) 9343-9350.

Teefy, S., 1996. Tracer studies in water treatment facilities: a protocol and case studies. American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association: Denver, Colorado, USA, p. 178.

United States Environmental Protection Agency (USEPA), 2010. Long term 2 enhanced surface water treatment rule toolbox guidance manual. Office of Water: Washington, DC, USA, p. 380.

Wols, B.A., Hofman, J.A.M.H., Uijttewaal, W.S.J., Rietveld, L.C., van Dijk, J.C., 2010. Evaluation of different disinfection calculation methods using CFD. *Environmental Modelling & Software* 25(4) 573-582.

Zhang, J., Huck, P.M., Anderson, W.B., Stubley, G.D., 2007. A Computational Fluid Dynamics Based Integrated Disinfection Design Approach for Improvement of Full-scale Ozone Contactor Performance. *Ozone: Science & Engineering* 29(6) 451-460.

Zhang, J., Huck, P.M., Stubley, G.D., Anderson, W.B., 2008. Application of a multiphase CFD modelling approach to improve ozone residual monitoring and tracer testing strategies for full-scale drinking water ozone disinfection processes. *Water Supply: Research and Technology-Aqua* 57(2) 79-92.

Zwietering, T.N., 1959. The degree of mixing in continuous flow systems. *Chemical Engineering Science* 11(1) 1-15.

CHAPITRE 5 RÉSULTATS COMPLÉMENTAIRES

En plus des résultats présentés dans l'article précédent, d'autres travaux ont été réalisés sur les modèles de calcul de désinfection et leur mise en application au sein d'usines de traitement d'eau potable. Les résultats principaux liés à ces recherches complémentaires sont présentés dans les paragraphes qui suivent.

5.1 Influence des paramètres de calcul sur l'inactivation obtenue avec le modèle SFA

Tel que décrit au chapitre 4 et en partie étudié par Craik [20], les paramètres d'intégration des modèles comme le pas de temps ou les limites d'intégration ont une influence notable sur les résultats. Il apparaît donc nécessaire d'étudier l'impact de ces paramètres sur les résultats pour s'assurer de la validité des calculs réalisés, i.e. qu'ils convergent vers une valeur stable et reproductible. Pourtant, malgré le nombre important de publication portant sur le modèle SFA [27, 28, 48-50], cet aspect n'a quasiment jamais été étudié. De plus, la capacité de calcul et de mémoire des automates programmables utilisés dans les installations de traitement étant souvent limitée en usine, il est utile d'essayer d'améliorer le plus possible la rapidité d'exécution et la simplicité du modèle. Ceci est d'autant plus vrai que le modèle doit servir à estimer l'inactivation en continue (fréquence d'une minute ou moins). Les résultats présentés ci-après portent sur le modèle SFA, utilisé dans la méthode IDDF (« Integrated Disinfection Design Framework »), et pourront servir de base à ceux qui souhaiteraient le mettre en place.

5.1.1 Impact de la méthode d'intégration

Comme montré par Craik [20], si le pas de temps utilisé n'est pas assez fin, l'inactivation obtenue est surestimée par rapport à sa vraie valeur (soit sa valeur convergente). Il faut donc s'assurer de disposer d'un pas de temps suffisamment fin sinon toutes les inactivations prédites avec le modèle SFA seront surestimées. Ceci est d'autant plus critique que le modèle SFA est déjà par principe un modèle qui tend à surestimer l'inactivation en raison de l'hypothèse sous-jacente de ségrégation complète du fluide.

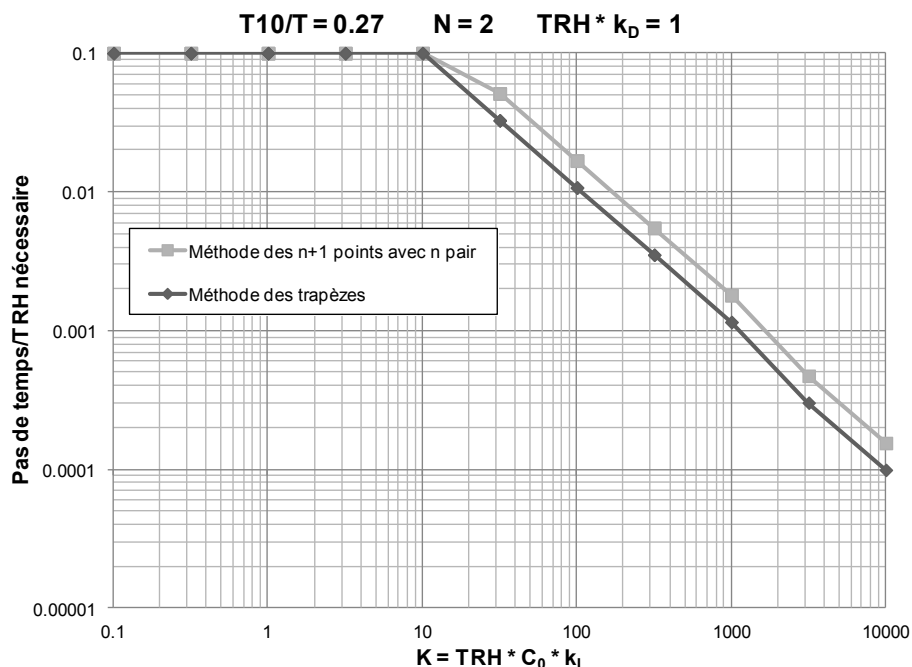


Figure 5-1: Impact de la méthode d'intégration sur le pas de temps nécessaire

La figure 5-1 met en évidence l'impact de la méthode d'intégration numérique utilisée dans le modèle SFA sur le pas de temps nécessaire pour atteindre la bonne valeur d'inactivation (à 0.05 log près). Pour une performance hydraulique équivalente à 2 CSTR en séries (ou un T_{10}/T de 0.27) et une décroissance faible ($TRH \cdot k_D = 1$), le pas de temps nécessaire par rapport au TRH a été déterminé selon la méthode d'intégration employée. La méthode classique des trapèzes et la méthode des $n+1$ points décrite par Fogler [19] ont été comparées. Ainsi, quand la constante cinétique adimensionnelle K est inférieure ou égale à 10, quel que soit la méthode d'intégration employée, le pas de temps nécessaire ne dépasse pas celui minimalement posé de $1/10$ de TRH. Ce pas de temps minimum a été fixé pour s'assurer d'une intégration convenable. Pour des valeurs de K supérieures à 10, la méthode des $n+1$ points nécessite un pas de temps moins fin que la méthode des trapèzes. Bien que cette différence puisse visuellement apparaître marginale (dû à l'échelle logarithmique), la méthode des trapèzes requiert un pas de temps 1.6 fois plus fin que la méthode des $n+1$ points. Cela signifie concrètement que la mise en place dans un tableur du modèle SFA nécessitera 60% plus de lignes en utilisant la méthode des trapèzes plutôt que celle des $n+1$ points. La figure 5-1 montre également que plus les conditions d'inactivation sont favorables (caractérisées par des valeurs de K élevées), plus le pas de temps à utiliser devra être fin. Pour des valeurs de K supérieures à 10, le pas de temps relatif au TRH doit être un log plus

fin pour chaque log d'augmentation de K . Ainsi, si l'augmentation de K est due à une augmentation du temps de rétention hydraulique, le pas de temps absolu (en minutes) restera inchangé. Mais si cette augmentation résulte d'une constante de létalité ou d'une concentration initiale de désinfectant plus élevée, le pas de temps absolu devra être affiné en proportion. En effet, si k_L ou C_0 augmente, c'est directement le taux d'inactivation ($r_I = dI/dt = k_L * C * I$) qui augmente. Les cinétiques d'inactivation sont donc plus rapides et il faut par conséquent disposer d'un pas de temps plus fin pour les décrire correctement.

5.1.2 Impact du pas de temps

Comme illustré par la figure 5-1, le pas de temps nécessaire pour atteindre la bonne valeur d'inactivation dépend des conditions d'inactivation et de décroissance du désinfectant, de la performance hydraulique du réacteur mais aussi de la méthode d'intégration utilisée dans le modèle SFA. Dans les résultats présentés par la suite, la méthode d'intégration des $n+1$ points est utilisée car c'est celle qui nécessite le moins de capacité de calcul. La figure 5-2 présente pour trois conditions hydrauliques différentes (mauvaise, moyenne et bonne) la finesse du pas de temps à mettre en place suivant les conditions de décroissance et d'inactivation. Pour des décroissances extrêmement élevées par rapport au TRH ($k_D * TRH = 1000$), le pas de temps minimal est suffisant pour converger vers la bonne valeur d'inactivation, quel que soit K . Mais plus la décroissance est faible, plus il est nécessaire de disposer d'un pas de temps fin. En effet, quand la concentration de désinfectant ne varie presque pas (dû à une constante de décroissance faible ou à un temps de rétention trop court), les cinétiques d'inactivation, et donc le pas de temps nécessaire, dépendent directement de la concentration initiale. Mais quand la décroissance devient importante, la concentration de désinfectant baisse rapidement et le taux d'inactivation est alors diminué. En conséquence, la finesse du pas de temps n'a plus besoin d'être si poussée car la concentration en microorganismes baisse moins rapidement. En comparant les trois graphiques, il apparaît que plus la performance hydraulique du réacteur est élevée, plus le pas de temps utilisé peut être grossier.

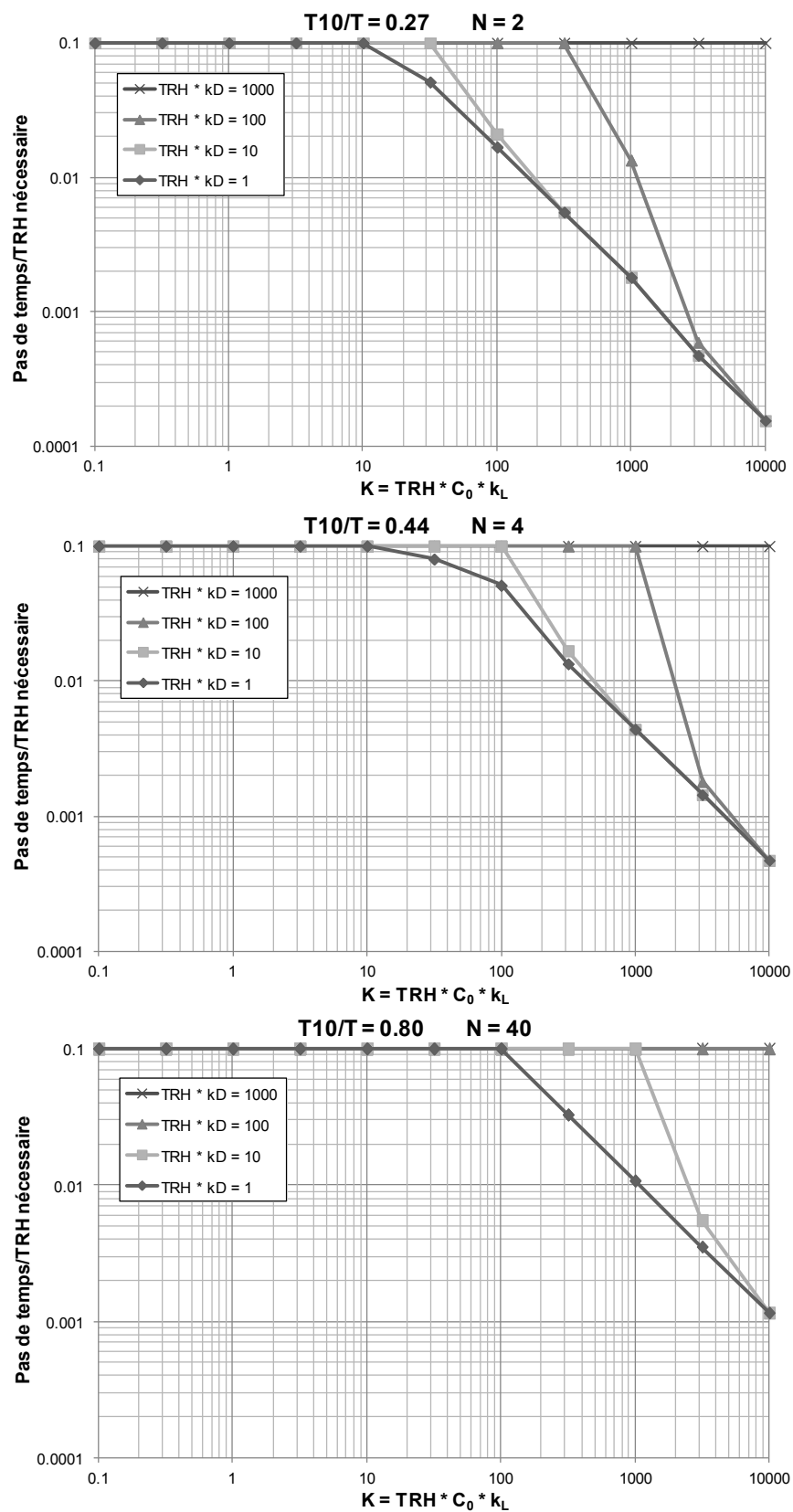


Figure 5-2: Pas de temps à utiliser pour le modèle SFA

Toute personne souhaitant mettre en place le modèle SFA ou la méthode IDDF devrait se référer aux graphiques de la figure 5-2 afin de déterminer le pas de temps à utiliser. De même, les auteurs ayant déjà mis en place ce modèle peuvent utiliser cette figure pour vérifier s'ils ont utilisé un pas de temps assez fin et que leurs prédictions ne sont donc pas surestimées.

5.1.3 Partie à considérer de la Distribution des Temps de Séjour (DTS)

Dans l'objectif d'optimiser la mise en place du modèle SFA et de limiter les capacités requises, la question de savoir si l'ensemble de la Distribution des Temps de Séjour (DTS) déterminait l'inactivation finale a été étudiée. Sur le même principe que ce qui a été présenté pour le pas de temps, la figure 5-3 met en évidence la partie de la DTS sur laquelle appliquer le modèle SFA pour obtenir la valeur convergente d'inactivation (à 0.05 log près). Premièrement, il ressort que peu importe les conditions (hydrauliques, de décroissance ou d'inactivation), l'inactivation est toujours déterminée par ce qui se passe durant les 2 premiers TRH. Par exemple, pour 2 CSTR en série, même quand la décroissance du désinfectant est élevée ($TRH \cdot k_D = 1000$) et K faible ($K < 1$), le temps de séjour déterminant la valeur finale de l'inactivation ne dépasse pas 2 TRH. Par conséquent, il est inutile d'appliquer le modèle SFA au-delà de 2 TRH car la valeur convergente est déjà atteinte dans tous les cas. Or dans la littérature, les calculs avec le modèle SFA (ou la méthode IDDF) sont habituellement effectués sur une période allant de 4 à 5 TRH. Il est donc possible d'alléger d'au-moins de moitié la capacité utilisée par le modèle SFA sans modifier significativement l'inactivation finale obtenue. Par ailleurs, la figure 5-3 montre que plus K est élevé, plus la performance de désinfection obtenue est déterminée par le début de la DTS et donc par la partie du débit sortant le plus rapidement du réacteur. En effet, quand les cinétiques de désinfection sont importantes, la quantité de microorganismes viables sortant avec la majorité du débit apparaît comme négligeable en comparaison de celle sortant presque immédiatement du réacteur et ayant donc été peu ou pas inactivée. Quand les conditions d'inactivation sont faibles (concentration initiale de désinfectant basse ou microorganismes peu sensibles), la quantité de microorganismes viables sortant avec le reste du débit est considérable et doit donc être prise en compte dans le calcul final de l'inactivation. Ceci explique pourquoi les microorganismes ou composés chimiques les plus réactifs sont davantage sensibles aux phénomènes de court-circuitage que les éléments peu réactifs (tel qu'observé par Tang et al. [30]).

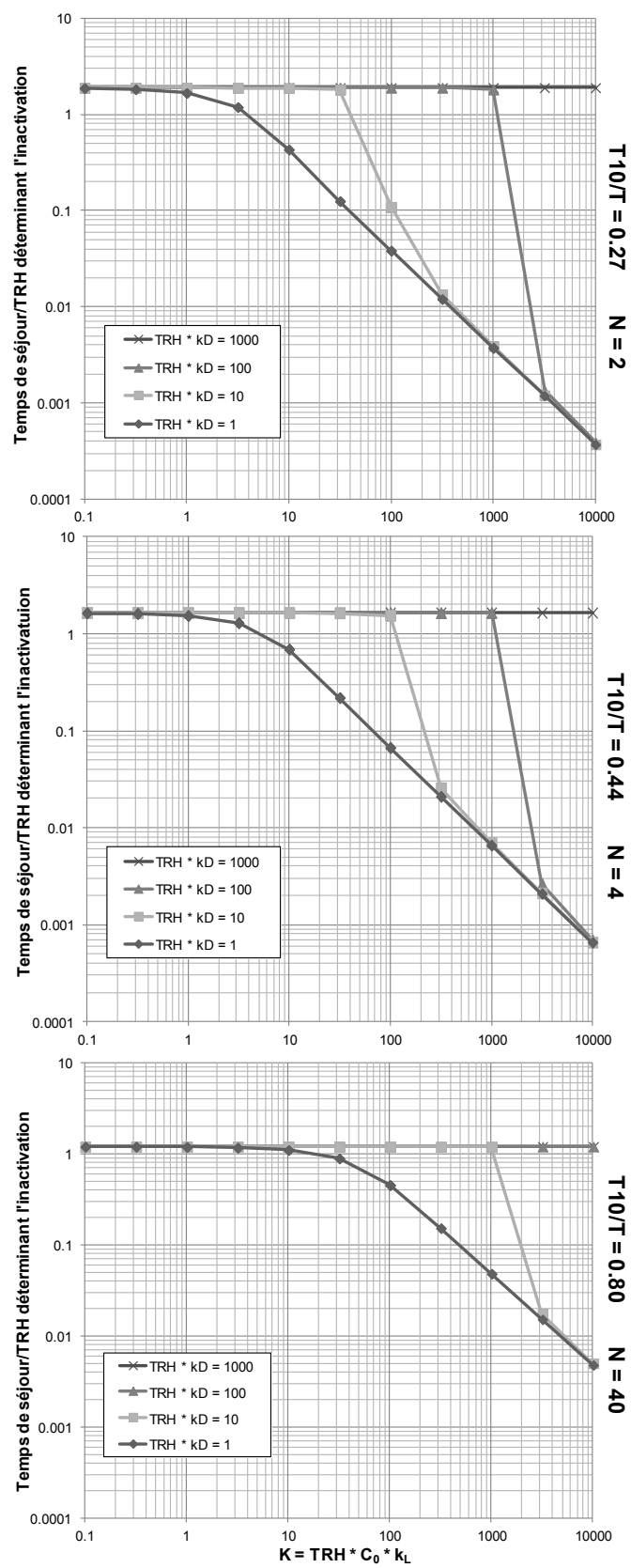


Figure 5-3: Partie de la DTS déterminant l'inactivation

La figure 5-3 montre parallèlement que plus la performance hydraulique est élevée, plus les courbes se recentrent autour d'un temps de séjour significatif correspondant à 1 TRH. Ceci s'explique par le fait que l'écoulement se rapproche d'un écoulement piston et par conséquent aucun débit ne sort du réacteur longtemps avant ou après le TRH théorique. Par ailleurs, comme pour le pas de temps, quand la décroissance du désinfectant devient importante, le taux d'inactivation se retrouve diminué par la baisse rapide de la concentration de désinfectant. La cinétique globale d'inactivation est donc ralentie et une plus grande partie du débit contribue à l'inactivation finale. A partir des figures 5-2 et 5-3, il s'avère possible d'optimiser la mise en place du modèle SFA afin de réduire au maximum les capacités requises en choisissant le pas de temps et la période de calcul appropriés selon les conditions. Du fait de la manière dont ces courbes ont été générées (convergence à 0,05 log près), les résultats obtenus devraient cependant être diminués de 0.1 log pour s'assurer de ne pas surestimer l'inactivation. En plus de l'établissement de critères concernant les paramètres de calcul du modèle SFA, ces résultats ont permis d'identifier et d'expliquer l'impact des conditions d'inactivation, de décroissance et d'écoulement sur l'inactivation finale, et ainsi d'améliorer la compréhension des phénomènes agissant au sein des réacteurs de désinfection.

5.2 Courbes de traçage supplémentaires et impact du débit

Dans les usines de traitement d'eau potable de Chomedey et Des Baillets, trois essais de traçage ont été réalisés à trois débits différents. Une partie seulement des résultats de ces essais a été présentée dans l'article (une courbe de traçage sur trois pour chaque usine). Les paragraphes suivants vont donc permettre de présenter les résultats manquants afin d'étudier l'impact du débit sur la performance hydraulique du réacteur.

5.2.1 Ajustement des courbes de traçage supplémentaires

Les modèles N-CSTR et PFD sont les deux approches les plus classiques utilisées pour ajuster des courbes de traçage. La question de savoir si un modèle est supérieur à l'autre est donc récurrente. La figure 5-4 montre les essais de traçage supplémentaires réalisés dans les usines de Chomedey et de Des Baillets ainsi que l'ajustement de ces courbes avec les modèles N-CSTR et PFD. La forme des courbes varie considérablement d'un essai de traçage à un autre de même que la durée des essais. Pourtant, les deux modèles hydrauliques parviennent à correctement décrire

les résultats. Les essais de traçage réalisés à Chomedey présentent beaucoup moins de variabilité que ceux de Des Bailleurs où la concentration de traceur mesurée baisse ou stagne à plusieurs reprises. Ceci caractérise généralement des phénomènes de recirculation au sein du bassin.

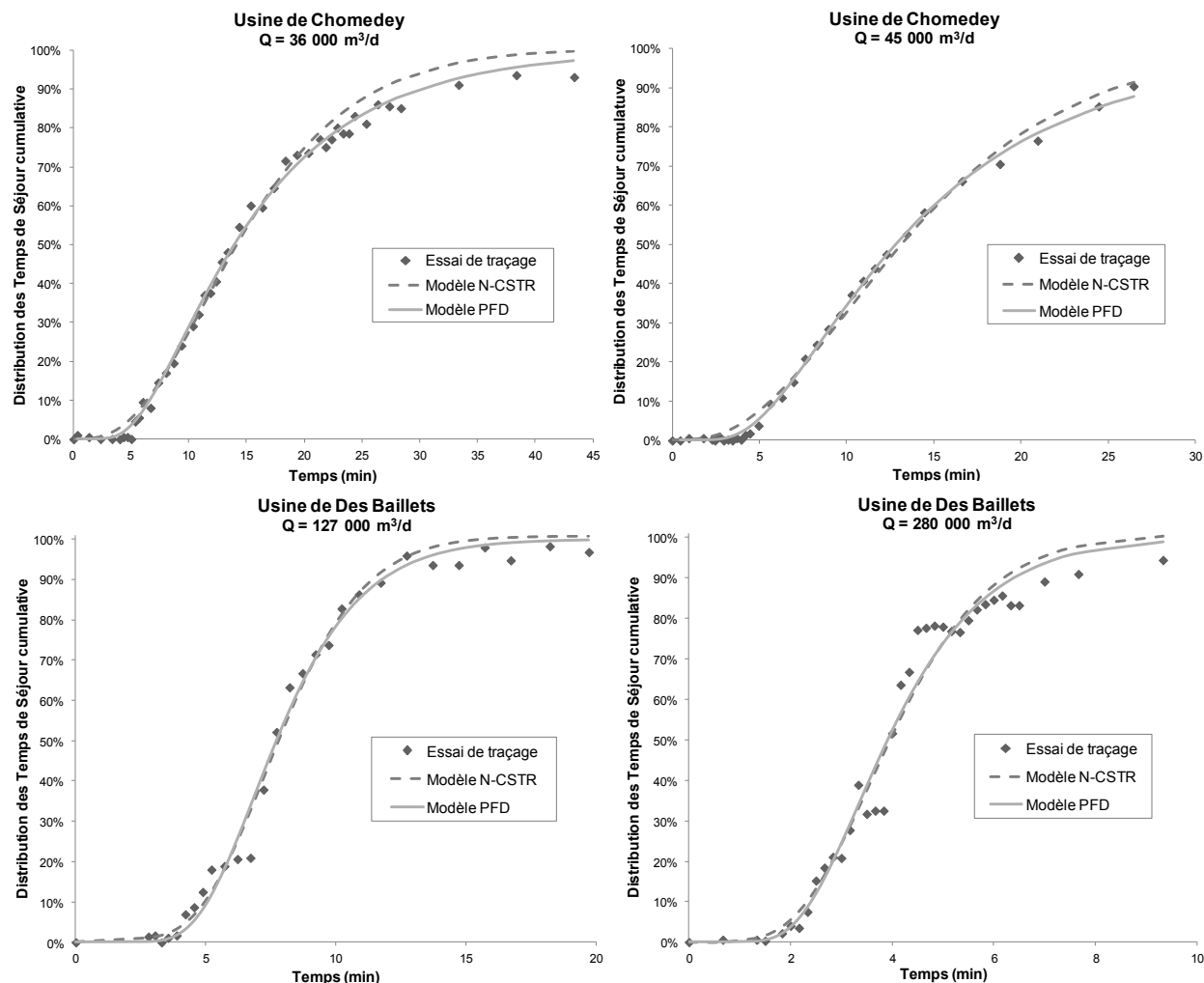


Figure 5-4: DTS cumulatives ajustées avec les modèles N-CSTR et PFD

Sur les résultats de Chomedey, le modèle PFD semble offrir le meilleur ajustement en collant davantage aux points expérimentaux du début et de la fin de la courbe. Pour Des Bailleurs, les deux modèles donnent des résultats très proches mais ne permettent pas de tenir compte des phénomènes de recirculation qui semblent être en action.

Tableau 5.1: Caractéristiques des essais de traçage et paramètres ajustés des modèles

Type de contacteur	Usine de traitement d'eau potable			
	Chomedey		Des Bailleurs	
	Ozone		Ozone	
Débit (m ³ /d)	36 000	45 000	127 000	280 000
Modèle N-CSTR				
TRH (min)	16	15	8	4
N	3.6	3.2	10.1	7.3
R ²	0.996	0.994	0.990	0.972
Modèle PFD				
TRH (min)	17	15	8	4
Pe	3.6	3.3	16.8	12.0
R ²	0.997	0.999	0.991	0.975

TRH : Temps de Rétention Hydraulique, N : Nombre de CSTRs en série, Pe: Nombre de Peclet

Le tableau 5-1 résume les informations pertinentes concernant les essais de traçage et l'ajustement des modèles. Le débit traversant le contacteur varie presque d'un ordre de grandeur entre l'usine de Chomedey et celle de Des Bailleurs. Les modèles semblent néanmoins s'ajuster convenablement aux résultats des essais de traçage comme mis en évidence par les valeurs élevées de R^2 . Pour le cas de Des Bailleurs au débit maximum, les résultats expérimentaux sont moins bien décrits par les modèles ($R^2 = 0.97$). La fiabilité de ces résultats peut néanmoins être remise en question du fait de l'allure de la courbe ainsi que du TRH très faible qui a dû compliquer l'échantillonnage. Les Temps de Rétention Hydraulique prédits par les deux modèles sont identiques et diminuent avec l'augmentation du débit. Il aurait été intéressant de mesurer exactement les volumes d'eau dans les contacteurs au moment des essais de traçage afin de comparer les temps de rétention hydraulique obtenus avec ceux prédits. Comme mentionné dans l'article, le contacteur de Des Bailleurs présente des performances hydrauliques élevées, équivalentes à 10 ou 7 CSTR en séries, bien qu'il ne soit seulement composé de 4 cuves en séries. La seule prise en compte de la configuration physique d'un réacteur n'est donc pas suffisante pour correctement évaluer sa performance hydraulique.

5.2.2 Impact du débit sur les performances hydrauliques

Un essai de traçage demande beaucoup de travail de mise en œuvre à l'échelle d'une installation réelle. L'US EPA recommande cependant d'en réaliser plusieurs (idéalement quatre) afin de prendre en compte principalement l'effet du débit. La figure 5-5 montre donc l'impact du débit

sur la performance hydraulique, définie par le nombre de CSTR en série obtenu lors de l'ajustement des essais de traçage avec le modèle N-CSTR pour les installations de Des Baillets et Chomedey.

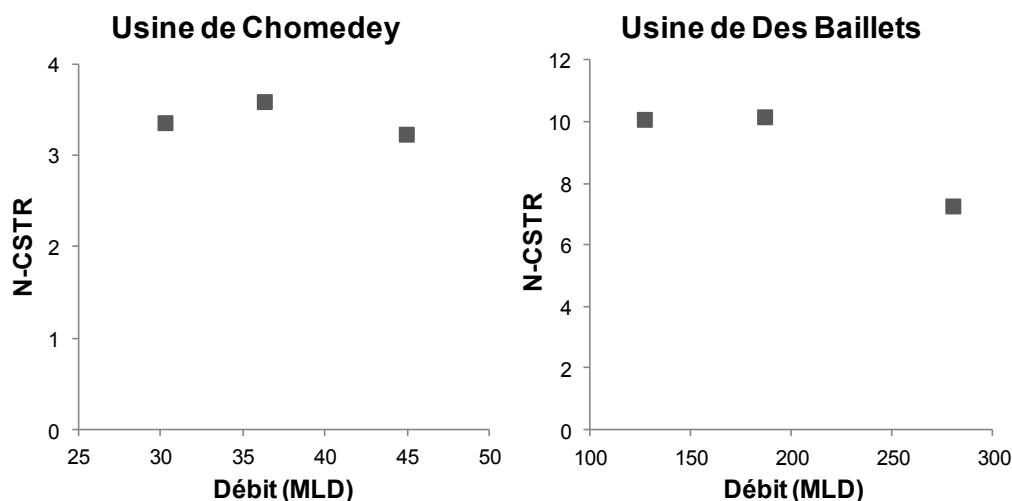


Figure 5-5: Impact du débit sur les performances hydrauliques

Pour le contacteur de Chomedey, le nombre de CSTR en série varie quelque peu en fonction du débit mais l'impact reste limité. Pour celui de Des Baillets, le passage de 127 MLD (millions de litres par jour) à 187 MLD n'a presque aucun impact sur N mais à 280 MLD la performance hydraulique chute considérablement. Il est difficile de savoir si cette différence est due à un changement d'hydrodynamique au sein du contacteur provenant des changements opérationnels ou si l'ajustement du modèle est erroné du fait des mauvais résultats expérimentaux. Cette figure confirme la nécessité de réaliser des essais de traçage à différents débits afin de vérifier si l'hypothèse théorique que le débit n'influence pas ou peu la performance hydraulique du contacteur est valide. Pour le cas de Chomedey, cette hypothèse semble s'appliquer et la performance hydraulique du contacteur pourrait être fixée autour de 3 CSTR en séries. Pour Des Baillets, un nouvel essai de traçage pourrait être réalisé à fort débit de manière à confirmer ou infirmer la baisse de performance observée. L'impact du débit sur les performances hydrauliques a été relativement peu étudié dans la littérature. Kim et al. [26] et Ducoste et al. [49] ont analysé l'allure des courbes de traçage à différents débits et ont conclu que, en cohérence avec la théorie, le débit n'impactait pas significativement le comportement hydraulique du réacteur. Seuls Dooil et al. [51] ont comparé, en plus de l'allure des courbes, les valeurs du coefficient de dispersion normalisé (d) obtenues. Pour deux diamètres de conduite d'entrée au réacteur testés, l'impact du

débit sur d était négligeable. Mais pour le diamètre maximum étudié, la valeur du débit influençait grandement l'allure de la courbe et la valeur de d associée. Il est à noter que le contacteur étudié présentait des performances étonnement élevées, dues à la vitesse importante d'entrée de l'eau dans le réacteur et à sa configuration. Sans essais de traçage complémentaires, il apparaît donc difficile de juger a priori de l'impact du débit sur les performances hydrauliques tant les phénomènes hydrodynamiques au sein des contacteurs peuvent être complexes.

5.3 Niveau de ségrégation dans les réacteurs de désinfection

Les performances de désinfection sont fonction à la fois du degré de mélange au niveau macroscopique et au niveau microscopique. Alors qu'il est possible de décrire assez facilement et précisément le niveau de mélange macroscopique au-travers d'essais de traçage, le mélange à l'échelle microscopique est difficilement caractérisable. Seul le nombre de ségrégation (N_{seg}) introduit par Nauman [18] fournit une évaluation a priori du niveau de ségrégation. Cette information s'avère utile lorsqu'il s'agit de choisir un modèle de mélange microscopique (comme MMA ou SFA) et qu'il faut donc juger si le comportement microscopique du fluide est davantage proche d'être complètement mélangé ou complètement ségrégué. Les résultats qui suivent vont permettre d'évaluer d'un point de vue théorique le niveau de ségrégation dans les bassins de désinfection et de discuter du concept de mélange à l'échelle microscopique.

5.3.1 Diffusivité et niveau de ségrégation des principaux désinfectants

Le niveau de ségrégation dans le contacteur, caractérisable avec le Nombre de Ségrégation, dépend de plusieurs paramètres dont la diffusivité du désinfectant dans l'eau.

Tableau 5.2: Nombre de ségrégation et diffusivité des principaux désinfectants

	Désinfectant							
	Ozone		Chlore		Bioxyde de chlore		Monochloramine	
Conditions								
Température (°C)	1	30	1	30	1	30	1	30
TRH (h)	0.25		6		6		6	
Pertes de charge (m)	0.1		0.3		0.3		0.3	
Caractéristiques								
Volume molaire* (cm ³ /mole)	<i>n.d.</i>		40.3		39.4		42.5	
Diffusivité (m ² /s)	1.1E-09	2.1E-09	8.5E-10	2.0E-09	8.6E-10	2.1E-09	8.2E-10	2.0E-09
Nombre de Ségrégation	0.00178	0.00029	0.00027	3.5E-05	0.00026	3.5E-05	0.00028	3.7E-05

*au point d'ébullition normal ; TRH : Temps de Rétention Hydraulique ; Volume molaire de l'eau au point d'ébullition normal = 18.7 cm³/mole

Le tableau 5-2 présente les diffusivités et nombres de ségrégation associés à l'ozone, au chlore, au bioxyde de chlore et à la monochloramine lorsque la température de l'eau est de 1°C et 30°C. Pour l'ozone, la diffusivité a été déterminée d'après la corrélation de Johnson et Davis [52] en extrapolant à des températures inférieures à 10°C. Pour les trois autres désinfectants, la diffusivité a été calculée avec la formule de Scheibel [53] en utilisant les volumes molaires de l'eau [54] et des molécules désinfectantes. Les volumes de ces dernières ont été calculés par la méthode additive de Le Bas [54]. Outre la diffusivité, le nombre de ségrégation dépend également du TRH et de la turbulence. Les valeurs pour ces paramètres ont été choisies arbitrairement dans la gamme de celles couramment rencontrées en fonction du désinfectant. Les nombres de ségrégation obtenus pour chaque désinfectant sont très inférieurs à 1. Ces résultats concordent avec les autres estimations du nombre de ségrégation faites par Haas [55] et par Craik [20] pour le chlore et l'ozone respectivement. D'après Nauman [18], un nombre de ségrégation inférieur à 0.1 indique que le niveau de ségrégation du fluide est très faible et que le degré de mélange microscopique est donc maximum. En plus des résultats expérimentaux présentés dans l'article, ceci confirme de manière théorique que l'utilisation du modèle SFA n'est pas appropriée pour la désinfection de l'eau. D'après les résultats du tableau 5-2, le modèle MMA devrait être parfaitement adaptée au calcul des performances de désinfection. Les résultats expérimentaux de l'article ainsi que les simulations réalisées par Wols [33] montrent cependant que ce n'est pas tout à fait le cas. Une explication est fournie dans le paragraphe suivant.

5.3.2 Mélange à l'échelle microscopique

Comme expliqué auparavant, le modèle SFA considère que les éléments qui composent le fluide n'interagissent pas les uns avec les autres durant leur traversée du réacteur (tels des réacteurs batch isolés) mais sont finalement mélangés ensemble à la sortie du réacteur. Le modèle SFA n'est donc applicable que lorsque le fluide est entièrement ségrégué, soit pour des viscosités extrêmement élevées, ou pour des réactions d'ordre 1 où le niveau de ségrégation n'a aucune importance sur la cinétique de réaction. Ce dernier point, démontrable mathématiquement [19], peut s'expliquer par le fait que le pourcentage d'enlèvement (C/C_0) dans les réactions d'ordre 1 n'est fonction que du temps. Or le temps de séjour dans le réacteur des différents éléments (fourni par la Distribution des Temps de Séjour) relève uniquement du mélange macroscopique. Pour les réactions d'ordres inférieurs ou supérieurs à 1, l'enlèvement C/C_0 est fonction du temps mais aussi de la concentration du composé principal ou des autres composés réactifs. Si le fluide n'est pas totalement ségrégué, cela signifie que les éléments peuvent se mélanger avec d'autres plus ou moins facilement suivant la diffusivité des composés. A l'opposé extrême du modèle SFA, le modèle MMA pose que lorsqu'ils entrent dans le réacteur, les différents éléments du fluide se retrouvent entièrement mélangés avec les éléments à proximité déjà présents. Il suppose en plus que leur entrée se fait plus ou moins proche de la sortie du réacteur en fonction de leur temps de séjour. Or même si la diffusivité des composés est importante et le fluide peu visqueux (ce qui est notre cas en traitement de l'eau), les éléments les plus rapides du fluide vont tout de même devoir traverser l'ensemble du réacteur et donc interagir avec les autres éléments situés dans chaque chambre successive. Considérer que ces éléments vont uniquement interagir avec ceux sur le point de sortir du réacteur constitue donc une hypothèse purement théorique et peu réaliste. Pour des réactions d'ordre 0, l'enlèvement (C/C_0) est inversement lié à la concentration initiale et plus celle-ci est grande, plus l'enlèvement apparaîtra proportionnellement faible. D'où le fait que la méthode SFA soit la plus conservatrice pour des réactions d'ordre 0 car elle considère que les éléments les plus rapides sont exposés à la concentration maximale (et inversement pour MMA). Pour les réactions d'ordre 2 utilisées pour décrire la réaction d'inactivation, où l'enlèvement des microorganismes est directement lié à la concentration de désinfectant, la méthode MMA devient l'extrême conservateur. Les deux modèles SFA et MMA définissent donc des extrêmes purement théoriques, impossibles à retrouver dans des réacteurs réels. Les critères proposés par Nauman [18], à savoir que le fluide serait complètement ségrégué lorsque $N_{seg} \gg 1$ et complètement

mélangé lorsque $N_{seg} \ll 1$, ne correspondent pas à la réalité. Ainsi, même si les valeurs du nombre de ségrégation présentées dans le tableau 5-2 sont très faibles, une ségrégation existe inévitablement dans les bassins de désinfection du fait de la présence de chicanes. De plus, les interactions qui ont lieu entre les éléments traversant rapidement le réacteur et ceux déjà présents se font durant toute la traversée du réacteur et pas seulement à la fin du réacteur. Les résultats des simulations effectuées par Wols et al. [33] montrent par ailleurs que les profils de vitesse au sein du réacteur correspondent avec ceux de la concentration en ozone. Autrement dit, les éléments traversant le plus rapidement sont exposés à des concentrations en ozone supérieures à celles des éléments stagnants à proximité. La diffusivité de l'ozone n'est donc pas suffisamment élevée pour entraîner un mélange complet. Un comportement similaire est attendu de la part des autres désinfectants qui présentent des diffusivités semblables. En conclusion, le modèle partiellement ségrégué (Pseg) apparaît à la fois réaliste et conservateur. Réaliste car, contrairement au modèle MMA, il prend en compte dans sa description du mélange microscopique la ségrégation induite par la présence de chicanes. Conservateur car il considère que la concentration dans chaque cuve est uniforme et égale à la concentration de sortie.

5.4 Installation en usine

L'objectif final du développement de la méthode de calcul de l'inactivation présentée au paragraphe 4.3.4 est de permettre sa mise en place dans le plus grand nombre d'installations de traitement d'eau potable possible. Comme mentionné dans le Règlement sur la Qualité de l'Eau Potable (RQEP) publié en 2012 [43], « toute installation de traitement de désinfection de l'eau faisant partie d'un système de distribution desservant en eau plus de 20 000 personnes doit être munie d'un logiciel de calcul en continu permettant de déterminer le taux d'élimination atteint par cette installation, des virus et autres microorganismes mentionnés aux articles 5, 5.1 et 6. ». Le modèle proposé, qui est à la fois fiable et peu exigeant concernant les ressources informatiques, apparaît approprié pour répondre à ces exigences.

5.4.1 Exemple de mise en place en usine

La figure 5-6 présente un exemple de mise en place du modèle afin de réaliser le calcul en continu des performances de désinfection au sein d'un contacteur d'ozone. Il découle de la

méthode proposée dans l'article et sert à identifier les paramètres à mesurer et la capacité de calcul requise.

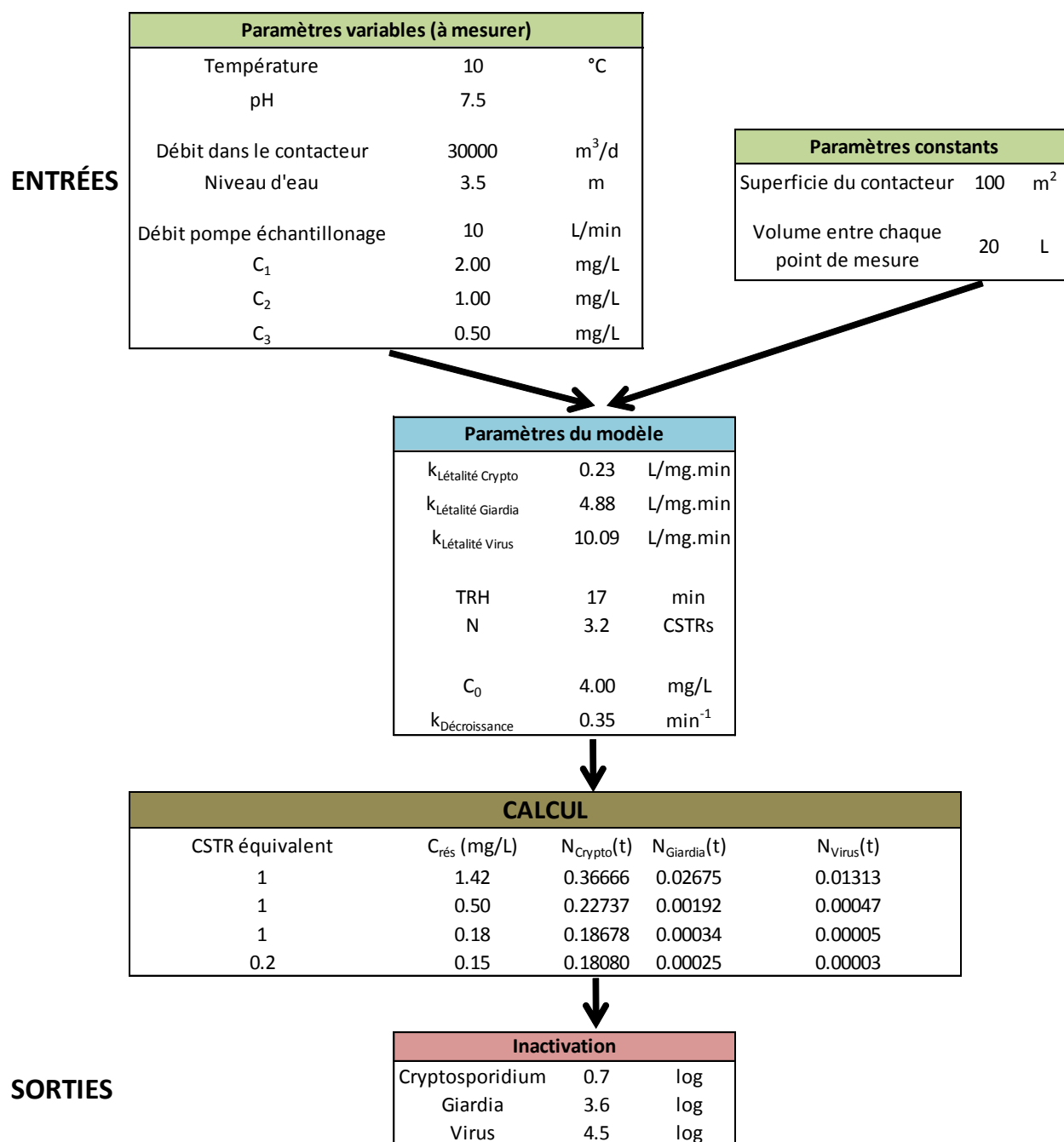


Figure 5-6: Entrées et étapes de calcul de l'inactivation pour un contacteur d'ozone

Les entrées sont composées des paramètres à mesurer et des paramètres constants propres à une installation. **Les paramètres à mesurer** comprennent la température, le pH, le débit, le niveau d'eau ainsi que le débit et les concentrations de désinfectant mesurés dans le serpentin en

parallèle. Ce serpentin en parallèle fait référence au système décrit par Rakness et al. [56] pour la mesure des paramètres de décroissance du désinfectant (C_0 et k_D). En utilisant un serpentin (ou une conduite de faible diamètre et de longueur importante), l'écoulement hydraulique est supposé de type piston et il est donc possible de mesurer en continu après différents temps de contact la concentration résiduelle de désinfectant comme dans un réacteur en cuvette. **Les paramètres constants** sont la surface du contacteur et la distance entre les points de mesure du serpentin. En utilisant une pompe à vitesse variable, il est possible jouer sur le débit du système en parallèle afin de réduire le temps de contact et s'assurer d'avoir une concentration résiduelle mesurable à chaque point de mesure même quand la décroissance est importante. À partir de ces paramètres variables et constants, les paramètres d'entrée du modèle sont calculés. Ainsi, les constantes de létalité des microorganismes sont déterminées en fonction du pH et de la température avec les formules fournies dans le Guide de Conception [21] ou dans le Toolbox de l'US EPA [25]. Le Temps de Rétention Hydraulique est fonction du débit et de la hauteur d'eau dans le contacteur mesurés. La performance hydraulique (caractérisée par N) est ici posée constante. Néanmoins, comme mentionné dans l'article, celle-ci peut être influencée par les conditions opérationnelles. Il est donc préférable d'effectuer plusieurs essais de traçage dans différentes conditions afin de valider cette hypothèse ou d'établir une éventuelle corrélation. Les paramètres de décroissance du désinfectant (C_0 et k_D) sont déterminés d'après les trois mesures effectuées dans le serpentin en utilisant la méthode décrite dans le Toolbox pour le modèle *Extended* T10 [25]. Avec la valeur de ces paramètres, le niveau d'inactivation des différents microorganismes est calculé en utilisant le modèle Partiellement Ségrégué (Pseg). Comme illustré par la figure 5-6, la performance hydraulique étant de 3.2 CSTR en série, le calcul nécessite uniquement 4 lignes pour être complété. La performance hydraulique des contacteurs en usine est généralement caractérisée par des $T10/T$ entre 0.3 et 0.7 (soit de 2 à 16 CSTR en série). L'étape de calcul devrait donc comprendre de 2 à 16 lignes maximum. Il est à noter que le calcul pourrait s'effectuer en une seule étape avec un produit plus ou moins long en fonction du nombre de CSTR en série. Si les performances hydrauliques sont jugées constantes, ce calcul en une étape est éventuellement plus approprié à un calcul en continu au sein d'un automate. En conclusion, la mise en place du modèle Pseg en usine est simple et peu demandante. Elle ne nécessite que peu de modifications dans la mesure où les variables à mesurer (tels que pH, température, débit, niveau d'eau) sont généralement déjà suivies.

5.4.2 Exemple d'utilisation

En dehors du calcul en continu servant à vérifier l'atteinte des objectifs réglementaires de désinfection, la mise en place en usine du modèle peut servir à simuler différents scénarios de panne ou d'entretien et ainsi anticiper les actions à prendre afin de maintenir les performances globales de désinfection. Ainsi, pour l'usine de Repentigny, différents scénarios simulant la perte d'une ou plusieurs étapes du procédé ont été étudiés pour identifier les mesures correctives éventuelles. Les figures 5-7 et 5-8 présentent deux exemples de scénarios éventuels. Les objectifs de désinfection correspondent aux objectifs de la ville de Repentigny d'après le Guide de Conception [21]. Les mesures correctives proposées ont été calculés avec la méthode de calcul réglementaire (la méthode T10) pour des conditions défavorables (température de 1°C et pH = 9).

Scénario 1 - Perte du procédé physico-chimique				
	Stratégie	Giardia (objectif 5 log)	Cryptosporidium (objectif 3 log)	Virus (objectif 6 log)
Physico-Chimique	-	-	-	-
UV	à pleine capacité (60 mJ/cm ²)	3	3	2
Post Cl₂	normale	faible	Inefficace	4
O₃	O ₃ rés = 0.5 mg/L	2	redondance	redondance

Figure 5-7: Impact de la perte du procédé physico-chimique et mesures correctives

La figure 5-7 simule la perte du procédé physico-chimique (coagulation, décantation, filtration), soit tout évènement (panne ou entretien) qui conduirait à une turbidité à la sortie des filtres supérieure à 0.3 UTN et par conséquent à la perte des crédits d'enlèvement de microorganismes du procédé. Dans cette situation, le procédé d'ultraviolets (UV) devrait être poussé à pleine capacité (60 mJ/cm² ou plus) et permettrait alors d'assurer la majeure partie de l'inactivation des parasites (*Giardia* et *Cryptosporidium*). La post-chloration ne serait pas impactée mais un

résiduel d’ozone d’au-moins 0.5 mg/L devrait être maintenu afin de compléter l’inactivation de *Giardia*.

Scénario 4 - Perte des UV et de l’O₃

	<u>Stratégie</u>	Giardia (objectif 5 log)	Cryptosporidium (objectif 3 log)	Virus (objectif 6 log)
Physico-Chimique	normale	3.5	3	2
UV	-	-	-	-
Post Cl₂	Cl ₂ rés = 1.4 mg/L	1.5	Inefficace	4
O₃	-	-	-	-

Figure 5-8: Impact de la perte des UV et de l’ozonation et mesures correctives

La figure 5-8 simule quant à elle la perte des UV et de l’ozonation. Le fonctionnement du procédé physico-chimique étant déjà optimal (le maximum des crédits possibles octroyé), c’est la post-chloration qui doit assumer les objectifs restants. Ainsi, un résiduel de chlore d’au-moins 1.4 mg Cl₂/L devrait être maintenu dans ces conditions. Enfin, la figure 5-9 résume l’ensemble des scénarios étudiés et des mesures correctives envisagées. Lorsqu’aucune mesure corrective ne permet d’atteindre les objectifs de désinfection (seulement dans 3 scénarios), cela conduit à l’émission d’un avis d’ébullition. Le diagramme de la figure 5-9 est uniquement un exemple des applications possibles en usine d’une méthode de calcul des performances. Au sein d’un logiciel automatisé, cette approche pourrait être utilisée pour évaluer d’après les conditions en cours les mesures appropriées. Cet exercice pourrait être réalisé avec les objectifs réglementaires du RQEP [43] en utilisant la méthode réglementaire du T10 et avec les objectifs du Guide de Conception [21] en utilisant la méthode plus réaliste du modèle Pseg. Ainsi, le décideur disposerait de toutes les informations nécessaires pour choisir quelles mesures mettre en place en cas de panne de l’un de ses procédés.

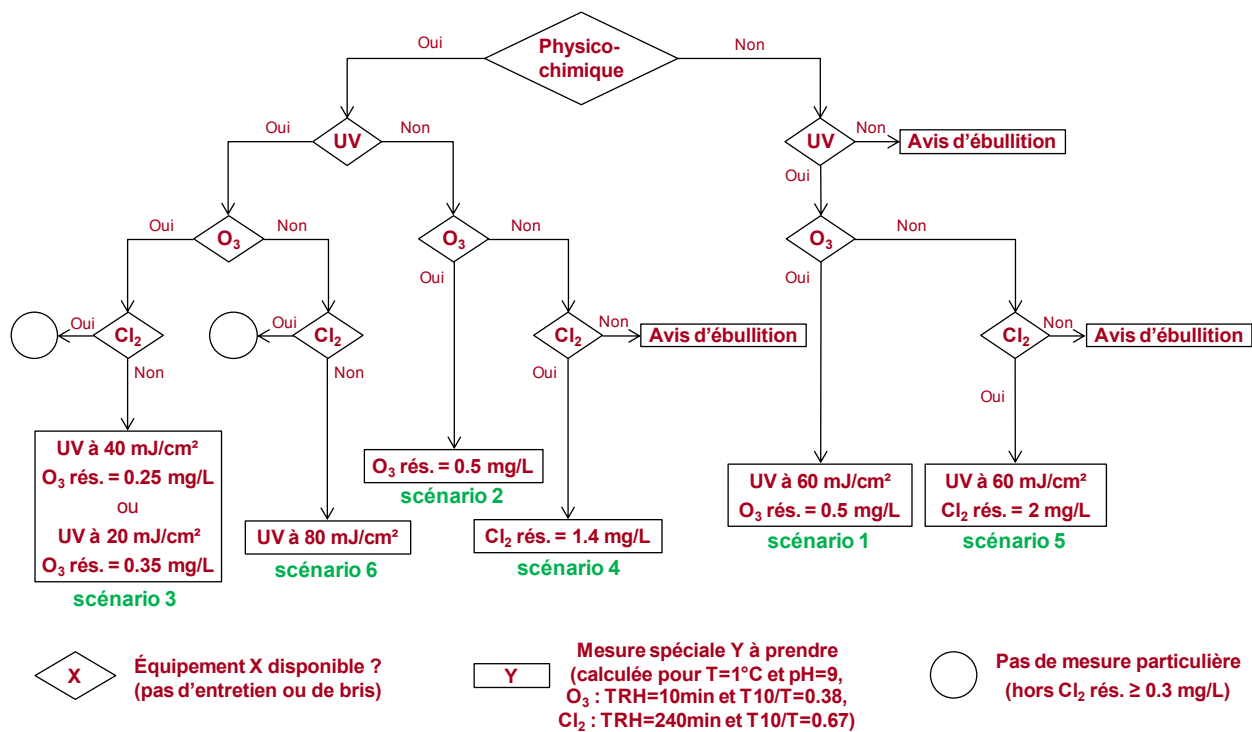


Figure 5-9: Diagramme décisionnel selon la disponibilité des équipements

CHAPITRE 6 DISCUSSION GÉNÉRALE

Au-travers des résultats présentés, que ce soit dans l'article ou en complément, les différentes méthodes de calcul des performances mises en évidence dans la revue de littérature ont été mises en place, analysées et comparées. Ainsi, la rigueur de chaque méthode, son applicabilité et ses résultats sur l'inactivation calculée ont pu être évalués. Une nouvelle méthode, répondant davantage aux objectifs spécifiques définis, a été proposée, validée et mise en place. Sa supériorité par rapport aux autres méthodes existantes a été démontrée théoriquement et expérimentalement.

Néanmoins, seuls deux essais d'inactivation ont été réalisés et il serait donc nécessaire de valider et comparer cette méthode proposée pour d'autres contaminants (microorganismes différents, micropolluants, etc.), désinfectants (ozone, monochloramine, etc.), configurations (moins conventionnelles, avec plus ou moins de chicanes, etc.) ou même encore à différentes échelles (pilote industriel, station réelle, etc.). Ceci permettrait de confirmer si les hypothèses sous-jacentes de la méthode proposée (ségrégation partielle, cinétique de type Chick-Watson, décroissance de 1^{er} ordre) et les inactivations prédites sont toujours valides face à différentes conditions. Une des limites potentielles de la méthode proposée est qu'elle se base entièrement sur les résultats d'essais de traçage. Bien que censé en théorie parfaitement caractériser les performances hydrauliques des contacteurs, les résultats d'essais de traçage ne sont pas toujours fiables ou exploitables en pratique. Ils présentent généralement des défauts de continuité et des incohérences théoriques (exemple de la concentration de traceur qui diminue dans un essai de type échelon). De plus, Zhang et al. [13] ont montrés que la concentration de traceur pouvait varier considérablement d'un point à un autre du réacteur et qu'il fallait par conséquent prélever des échantillons composites pour obtenir des résultats fiables. Pour des essais n'ayant pas respecté cette recommandation, il est par conséquent difficile de juger de la représentativité des résultats obtenus. Enfin, l'article a mis en évidence l'impact majeur du modèle utilisé pour décrire le mélange macroscopique sur l'inactivation finale calculée. On peut donc s'attendre à ce que des changements mineurs dans la courbe de traçage mesurée aient un impact notable sur l'inactivation calculée. En dépit de tout cela, il apparaît quand même plus fiable pour évaluer les performances hydrauliques du réacteur de se fier aux résultats des essais de traçage plutôt qu'à sa

configuration grossière. Cette analyse met néanmoins en exergue les limites des modèles (quels qu'ils soient) qui ne sauraient parfaitement simulés la complexité des phénomènes réels.

Une autre limite de la méthode proposée concerne son applicabilité. En effet, telle quelle, celle-ci ne s'applique pas aux contacteurs disposant de diffuseurs poreux. Bien que de plus en plus d'usines abandonnent ce système pour des systèmes d'injection en parallèle plus efficaces, encore beaucoup d'usines utilisent des diffuseurs. Il faudrait donc voir s'il est possible d'adapter le modèle proposé pour s'adapter à ces configurations sans anéantir les fondements théoriques qui le distinguent des méthodes réglementaires.

En relation avec le point précédent, la méthode de calcul proposée devrait être installée dans différentes usines pour vérifier son applicabilité et corriger d'éventuels défauts. Même si un exemple de mise en place au sein d'un tableur a été présenté, il ne saurait complètement représenter ce que prendrait l'installation du modèle dans une véritable usine de traitement d'eau potable.

Enfin, le calcul de l'enlèvement des micro-contaminants n'a été abordé que d'un point de vue théorique, soit en présentant uniquement la similitude entre les cinétiques d'inactivation et celles d'enlèvement de micropolluants. Comme mentionné plus haut, l'utilisation de ce modèle pour ces types de composés devrait être validée expérimentalement. De plus, la possible utilité du modèle concernant la réduction de la production de sous-produits de désinfection ou de matières organiques biodégradables devrait être évaluée.

CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

Les conclusions majeures de ce mémoire sont les suivantes :

- La méthode réglementaire utilisée au Québec, soit la méthode du T10, peut conduire à d'importantes surestimations de l'inactivation dans des gammes d'inactivation courantes ;
- La méthode *Extended* T10, proposée par l'US EPA, mène à des surestimations de l'inactivation encore plus importantes dans les mêmes conditions ;
- La méthode *Extended* CSTR, proposée par l'US EPA, donne les meilleurs résultats parmi les méthodes réglementaires mais n'est pas systématiquement représentative des performances hydrauliques réelles du contacteur ;
- La méthode IDDF, proposée comme alternative par certains auteurs, peut surestimer considérablement l'inactivation. De plus, elle est trop sensible aux paramètres de calcul et trop lourde pour être facilement implantable en usine ;
- La performance hydraulique d'un contacteur dépend de trop de facteurs pour être estimée convenablement à partir de la configuration globale (nombre et volume des chambres) ;
- La méthode développée, basée sur le modèle Partiellement ségrégué, semble une alternative valide pour le calcul des performances des procédés de désinfection ;
- Le modèle Partiellement ségrégué semble suffisamment simple pour être implanté en usine et utilisé à large échelle pour le calcul en continu des performances de désinfection et le calcul de l'enlèvement des micro-contaminants.

Les recommandations qui découlent de ces conclusions sont les suivantes :

- Abandonner les méthodes basées sur le concept du T10 et le modèle SFA ;
- Mettre à jour les méthodes de calcul réglementaires des performances d'inactivation ;
- Rendre obligatoire la réalisation d'essais de traçage pour caractériser les performances hydrauliques d'un contacteur.

RÉFÉRENCES

- [1] United States Environmental Protection Agency (USEPA), "Guidance manual for the compliance with the filtration and disinfection requirements," Washington, DC, USA, 1989.
- [2] Gouvernement du Québec, "Règlement modifiant le Règlement sur la qualité de l'eau potable (Loi sur la qualité de l'environnement)," *Gazette officielle du Québec*, 2012.
- [3] H. Chick, "An Investigation of the Laws of Disinfection," *Epidemiology & Infection*, vol. 8, pp. 92-158, 1908.
- [4] H. E. Watson, "A Note on the Variation of the Rate of Disinfection With Change in the Concentration of the Disinfectant," *Journal of Hygiene*, pp. 536-542, 1908.
- [5] L. W. Hom, "Kinetics of Chlorine Disinfection in an Ecosystem," *Journal of the Sanitary Engineering Division*, vol. 98, pp. 183-194, 1972.
- [6] D. Roy, R. S. Engelbrecht, and E. S. K. Chian, "Kinetics of Enteroviral Inactivation by Ozone," *Journal of the Environmental Engineering Division*, vol. 107, pp. 887-901, 1981.
- [7] C. N. Haas, J. Joffe, J. C. Hornberger, U. Anmangandla, M. Heath, and J. Jacangelo, "Development and validation of rational design methods of disinfection," American Water Works Association Research Foundation 90666, 1995.
- [8] O. Lev and S. Regli, "Evaluation of ozone disinfection systems: characteristic concentration C," *Journal of Environmental Engineering*, vol. 118, pp. 477-494, 1992.
- [9] J.-H. Kim, R. B. Tomiak, and B. J. Marinas, "Inactivation of *Cryptosporidium* oocysts in a pilot-scale ozone bubble-diffuser contactor. I: Model development," *Journal of Environmental Engineering*, vol. 128, pp. 514-521, 2002.
- [10] J.-H. Kim, J. L. Rennecker, R. B. Tomiak, B. J. Marinas, R. J. Miltner, and J. H. Owens, "Inactivation of *Cryptosporidium* oocysts in a pilot-scale ozone bubble-diffuser contactor. II: Model validation and application," *Journal of Environmental Engineering*, vol. 128, pp. 522-532, 2002.
- [11] COMSOL. (Consulté le 23 janvier 2013). Available: <http://www.comsol.com/events/fd/23165/>
- [12] S. Teefy, "Tracer studies in water treatment facilities: a protocol and case studies," American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA 90692, 1996.
- [13] J. Zhang, P. M. Huck, G. D. Stublely, and W. B. Anderson, "Application of a multiphase CFD modelling approach to improve ozone residual monitoring and tracer testing strategies for full-scale drinking water ozone disinfection processes," *Water Supply: Research and Technology-Aqua*, vol. 57, pp. 79-92, 2008.
- [14] O. Levenspiel, *Chemical reaction engineering*, 3rd ed. New York: Wiley, 1999.
- [15] E. B. Nauman and B. A. Buffham, *Mixing in continuous flow systems*. New York: Wiley, 1983.

- [16] A. Martin-Dominguez, V. G. Tzatchkov, I. R. Martin-Dominguez, and D. F. Lawler, "An enhanced tanks-in-series model for interpretation of tracer tests," *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, vol. 54, pp. 435-448, 2005.
- [17] C. N. Haas, J. Joffe, M. S. Heath, and J. Jacangelo, "Continuous Flow Residence Time Distribution Function Characterization," *Journal of Environmental Engineering*, vol. 123, pp. 107-114, 1997.
- [18] E. B. Nauman, "Droplet diffusion model for micromixing," *Chemical Engineering Science*, vol. 30, pp. 1135-1140, 1975.
- [19] H. S. Fogler, *Elements of chemical reaction engineering*, 4th ed. New Jersey: Upper Saddle River, 2006.
- [20] S. A. Craik, "Effect of micro-mixing conditions on predictions of *Cryptosporidium* inactivation in an ozone contactor," *Ozone: Science and Engineering*, vol. 27, pp. 487-494, 2005.
- [21] Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs du Québec (MDDEP), "Guide de conception des installations de production d'eau potable," 2012.
- [22] O. Lev and S. Regli, "Evaluation of ozone disinfection systems: characteristic time T," *Journal of Environmental Engineering*, vol. 118, pp. 268-285, 1992.
- [23] D. F. Lawler and P. C. Singer, "Analyzing disinfection kinetics and reactor design: a conceptual approach versus the SWTR," *Journal of the American Water Works Association*, vol. 85, pp. 67-76, 1993.
- [24] P. W. M. H. Smeets, A. W. C. van der Helm, Y. J. Dullemon, L. C. Rietveld, J. C. van Dijk, and G. J. Medema, "Inactivation of *Escherichia coli* by ozone under bench-scale plug flow and full-scale hydraulic conditions," *Water Research*, vol. 40, pp. 3239-3248, 2006.
- [25] United States Environmental Protection Agency (USEPA), "Long term 2 enhanced surface water treatment rule toolbox guidance manual," Office of Water, Washington, DC, USA EPA 815-D-09-001, 2010.
- [26] D. Kim, M. Elovitz, P. J. W. Roberts, and J.-H. Kim, "Using 3D LIF to investigate and improve performance of a multichamber ozone contactor," *Journal / American Water Works Association*, vol. 102, pp. 61-70, 2010.
- [27] W. Bellamy, K. Carlson, D. Pier, J. Ducoste, and M. Carlson, "Determining disinfection needs," *Journal of the American Water Works Association*, vol. 92, pp. 44-52, 2000.
- [28] K. Carlson, D. Pier, W. Bellamy, M. Carlson, J. Ducoste, G. Amy, and K. Rakness, "Implementation of the integrated disinfection design framework," American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA 90848, 2001.
- [29] D.-I. Kim, S. Hasan, G. Tang, B. J. Marinas, L. Couillard, H. Shukairy, and J.-H. Kim, "Simultaneous simulation of pathogen inactivation and bromate formation in full-scale ozone contactors by computer software," *Journal of the American Water Works Association*, vol. 99, pp. 77-91+12, 2007.

- [30] G. Tang, K. Adu-Sarkodie, D. Kim, J.-H. Kim, S. Teefy, H. M. Shukairy, and B. J. Marinas, "Modeling *Cryptosporidium parvum* oocyst inactivation and bromate formation in a full-scale ozone contactor," *Environmental Science and Technology*, vol. 39, pp. 9343-9350, 2005.
- [31] D. J. Greene, B. Farouk, and C. N. Haas, "CFD design approach: For chlorine disinfection processes," *Journal / American Water Works Association*, vol. 96, pp. 138-150+14, 2004.
- [32] D. J. Greene, C. N. Haas, and B. Farouk, "Computational fluid dynamics analysis of the effects of reactor configuration on disinfection efficiency," *Water Environment Research*, vol. 78, pp. 909-919, 2006.
- [33] B. A. Wols, J. A. M. H. Hofman, W. S. J. Uijttewaai, L. C. Rietveld, and J. C. van Dijk, "Evaluation of different disinfection calculation methods using CFD," *Environmental Modelling & Software*, vol. 25, pp. 573-82, 2010.
- [34] S. Talvy, F. Debaste, L. Martinelli, E. Chauveheid, and B. Haut, "Development of a tool, using CFD, for the assessment of the disinfection process by ozonation in industrial scale drinking water treatment plants," *Chemical Engineering Science*, vol. 66, pp. 3185-3194, 2011.
- [35] J. Zhang, P. M. Huck, W. B. Anderson, and G. D. Stubley, "A Computational Fluid Dynamics Based Integrated Disinfection Design Approach for Improvement of Full-scale Ozone Contactor Performance," *Ozone: Science & Engineering*, vol. 29, pp. 451-460, 2007.
- [36] J. Zhang, P. M. Huck, G. D. Stubley, and W. B. Anderson, "A comparison of the Eulerian and particle tracking approaches for prediction of ozone contactor performance," *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, vol. 60, pp. 197-209, 2011.
- [37] S. Vincent, "Caractérisation de l'activité radicalaire afin de prédire l'abattement des micropolluants dans les eaux ozonées (Maîtrise)," Maîtrise ès Sciences Appliquées (M.Eng.), Génies Civil, Géologique et des Mines, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada, 2009.
- [38] M. S. Elovitz and U. von Gunten, "Hydroxyl radical/ozone ratios during ozonation processes. I. The R_{ct} concept," *Ozone: Science and Engineering*, vol. 21, pp. 239-260, 1999.
- [39] J. L. Acero, K. Stemmler, and U. Von Gunten, "Degradation kinetics of atrazine and its degradation products with ozone and OH radicals: A predictive tool for drinking water treatment," *Environmental Science and Technology*, vol. 34, pp. 591-597, 2000.
- [40] U. von Gunten, "Ozonation of drinking water: Part I. Oxidation kinetics and product formation," *Water Research*, vol. 37, pp. 1443-1467, 2003.
- [41] X. Jin, S. Peldszus, and P. M. Huck, "Reaction kinetics of selected micropollutants in ozonation and advanced oxidation processes," 2012.
- [42] S. Vincent, A. Kotbi, and B. Barbeau, "Predicting hydroxyl radical activity and trace contaminants removal in ozonated water," *Ozone: Science and Engineering*, vol. 32, pp. 244-251, 2010.

- [43] *Règlement modifiant le Règlement sur la qualité de l'eau potable (Loi sur la qualité de l'environnement)*, É. o. d. Q. 2012 144e, 2012.
- [44] G. El Baz, "Développement d'un modèle de calcul de la performance des unités de désinfection (application aux usines Chomedey et DesBaillets) (Maîtrise)," Maîtrise ès sciences appliquées (M.Sc.A.), Génies Civil, Géologique et des Mines, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada, 2002.
- [45] B. Barbeau, "Études préliminaires dans le cadre de l'agrandissement des réserves de l'usine de Repentigny," Chaire industrielle CRSNG en eau potable de l'École Polytechnique de Montréal, 2001.
- [46] American Public Health Association (APHA), American Water Works Association (AWWA), and Water Environment Federation (WEF), *Standard methods for the examination of water and wastewater (21th Edition)*. Washington, DC, USA, 2005.
- [47] L. Boulos, "Influence de l'état physiologique des coliformes sur leur résistance à la désinfection," Maîtrise ès sciences appliquées, Génies Civil, Géologique et des Mines, École Polytechnique, Montréal, Québec, Canada, 1995.
- [48] W. D. Bellamy, G. R. Finch, and C. N. Haas, *Integrated disinfection design framework*. Denver, Colorado, USA: American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, 1998.
- [49] J. Ducoste, K. Carlson, and W. Bellamy, "The integrated disinfection design framework approach to reactor hydraulics characterization," *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, vol. 50, pp. 245-261, 2001.
- [50] C. N. Haas, J. Joffe, M. Heath, J. Jacangelo, and U. Anmangandla, "Predicting disinfection performance in continuous flow systems from batch disinfection kinetics," *Water Science and Technology*, vol. 38, pp. 171-179, 1998.
- [51] K. Dooil, N. Semih, P. J. W. Roberts, and K. Jae-Hong, "Ozone-contactor flow visualization and quantification using three-dimensional laser-induced fluorescence," *Journal / American Water Works Association*, vol. 102, pp. 90-99, 2010.
- [52] P. N. Johnson and R. A. Davis, "Diffusivity of ozone in water," *Journal of Chemical and Engineering Data*, vol. 41, pp. 1485-1487, 1996.
- [53] E. G. Scheibel, "Correspondence. Liquid Diffusivities. Viscosity of Gases," *Industrial & Engineering Chemistry*, vol. 46, pp. 2007-2008, 1954.
- [54] Poling, *Properties of Gases and Liquids*: Mcgraw Hill Professional, 2001.
- [55] C. N. Haas, "Micromixing and dispersion in chlorine contact chambers," *Environmental Technology Letters*, vol. 9, pp. 35-44, 1988.
- [56] K. L. Rakness, I. Najm, M. Elovitz, D. Rexing, and S. Via, "Cryptosporidium log-inactivation with ozone using effluent CT₁₀, geometric mean CT₁₀, extended integrated CT₁₀ and extended CSTR calculations," *Ozone: Science and Engineering*, vol. 27, pp. 335-350, 2005.